



TESIS - SF 092006

**KARAKTERISASI KOMPOSIT PEG 4000/SiO₂
(SiO₂= KUARSA, AMORF, KRISTOBALIT) DENGAN
*DYNAMIC MECHANICAL ANALYSER (DMA)***

Nur Aini Fauziyah
1113201016

DOSEN PEMBIMBING
Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

PROGRAM MAGISTER
BIDANG KEAHLIAN MATERIAL
JURUSAN FISIKA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2015



TESIS - SF 092006

**CHARACTERIZATION OF PEG 4000/SiO₂
COMPOSITES (SiO₂= QUARTZ, AMORF,
CRYSTOBALITE) BASED *DYNAMIC MECHANICAL
ANALYSER (DMA)***

Nur Aini Fauziyah
1113201016

SUPERVISOR
Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

MAGISTER PROGRAM
STUDY ON MATERIAL SCIENCES
DEPARTMENT OF PHYSICS
FACULTY OF MATHEMATIC AND NATURAL SCIENCES
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2015

Tesis ini disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar
Magister Sains (M.Si)

di

Institut Teknologi Sepuluh Nopember

oleh:

Nur Aini Fauziyah

NRP. 1113201016

Tanggal Ujian

: 29 Mei 2015

Periode Wisuda

: September 2015

Disetujui Oleh :

1. Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

NIP : 19660224 199002 1 001

(Pembimbing)

(.....)

2. Prof. Dr. Suasmoro, DEA.

NIP: 19550210 198010 1 001

(Penguji)

(.....)

3. Dr. M. Zainuri, M.Si.

NIP: 19640130 199002 1 001

(Penguji)

(.....)

Direktur Program Pascasarjana



Prof. Dr. Ir. Adi Soeprijanto, MT.

NIP: 19640405 199002 1 001

KARAKTERISASI KOMPOSIT PEG 4000/SiO₂ (SiO₂ = KUARSA, AMORF, KRISTOBALIT) DENGAN DYNAMIC MECHANICAL ANALYSER (DMA)

Nama : Nur Aini Fauziyah
NRP : 1113201016
Pembimbing : Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.

ABSTRAK

Dalam penelitian ini telah disintesis komposit polimer berpengisi silika (SiO₂) dengan polietilen glikol (PEG) 4000 sebagai matriks yang dikarakterisasi sifat mekaniknya dengan menggunakan *Dynamic Mechanical Analyser* (DMA) dengan mode modulus geser. Sumber serbuk silika adalah pasir silika yang diambil dari Tanah Laut, Pelaihari, Kalimantan Selatan. Pasir tersebut diekstraksi menggunakan magnet permanen secara berulang dan menggunakan metode ekstraksi, yaitu dengan perendaman HCl 2M selama 12 jam dengan tujuan untuk mereduksi impuritas-impuritas atau komposisi yang tidak diharapkan yang ada dalam pasir silika sebelum kemudian diproses untuk mendapatkan 3 fasa, yaitu silika kuarsa, amorf dan kristobalit. Terbentuknya 3 fasa tersebut dikonfirmasi dengan data difraksi sinar-X (XRD). Komposit disintesis dengan menggunakan metode *solid state reaction* menurut komposisi matriks-pengisi dengan variasi pengisi 0, 20, 40, 60 dan 80%wt. Analisis data FTIR dan XRD menunjukkan tidak terdapat puncak baru yang mengindikasikan keberhasilan terbentuknya komposit. Pengujian dengan DMA memberikan nilai modulus penyimpanan, faktor hilang, dan $\tan \delta$. Nilai absolut modulus penyimpanan tertinggi terjadi pada komposit dengan 80%wt silika kuarsa yaitu (1261 ± 18) MPa, kemudian diikuti dengan pengisi silika kristobalit (616 ± 19) MPa, dan silika amorf (318 ± 19) MPa. Penurunan nilai modulus penyimpanan terbesar terletak pada komposit dengan pengisi silika kuarsa, dan terendah pada penguat silika amorf yang mengindikasikan adanya penurunan densitas *crosslink*. Faktor hilang semakin meningkat seiring dengan penambahan pengisi menandakan semakin besarnya energi yang dilepas komposit akibat gesekan, sedangkan nilai $\tan \delta$ tertinggi dicapai oleh komposit dengan 0%wt penguat karena $\tan \delta$ secara fisis merupakan faktor redaman yang dialami oleh material komposit akibat ketidak teraturan gerakan rantai pada gugus fungsi polimer (gelatinisasi/ *dilution*). Perambatan *crack* terlihat jelas pada komposit dengan sedikit penguat (kuarsa, amorf, kristobalit), karena tidak ada silika di sekitar matriks sebagai penghalang gerakan bebas dari rantai polimer.

Kata kunci: komposit PEG 4000/SiO₂, komposisi fasa, modulus geser, DMA, densitas *crosslink*, *crack*.

CHARACTERIZATION OF PEG 4000/SiO₂ COMPOSITES (SiO₂ = QUARTZ, AMORF, CRYSTOBALITE) BASED DYNAMIC MECHANICAL ANALYSER (DMA)

Name : Nur Aini Fauziyah
Registration Number : 1113201016
Adviser : Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D.

ABSTRACT

In this research has been synthesised polymer composites based silica sand in variation size and shape with polyethylene glycol (PEG) 4000 as matrix and these mechanical properties will be characterised by using DMA (shear mode). Silica sand is taken from Tanah Laut, Pelaihari, Kalimantan Selatan. This has been extracted by using permanent magnet repeatedly and remained in HCl 2M for twelve hours, it's done for reducing impurity or inexpectation composition. Composites was synthesised by using solid state reaction based of PEG 4000 and SiO₂ composition (in weight fraction). XRD was determined quartz phase, amorphus phase, and cristobalite phase. By using FTIR was shown the chain bounding between PEG and SiO₂, and there is no new peak, so it was indicated of making composites successfully, also supported by XRD. Physics characterization and the viscoelastic behaviour was determined by DMA. This result shows storage modulus, loss modulus, and $\tan \delta$. The highest absolut storage modulus value was reached by 80%wt quartz (1261 ± 18) MPa, then followed by silica cristobalite (616 ± 19) MPa, and the last was amorphus silica (318 ± 19) MPa. The highest reduction of storage modulus value was happened in composites with quartz reinforcement, and the lowest was reached by composites with amorphus silica reinforcement, it indicated the reduction of crosslink density. Loss modulus increased by adding filler, and it indicated more losing energy of composites because of friction. The highest $\tan \delta$ was reached by 0%wt filler. $\tan \delta$ showed damped because of polymer chain movement. SEM showed these microstructure crack that happened. Crack propagation was reduced by existance of silica, because it can inhibit free motion of polymer chain.

Key words: PEG 4000/SiO₂ composites, phase compositions, shear mode, DMA, crosslink density, crack.

KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan kehadiran Allah SWT atas berkat limpahan rahmat, taufik, dan hidayah-Nya penulis dapat menyelesaikan Tesis sebagai syarat wajib untuk memperoleh gelar Magister Sains (M.Si) pada jurusan Fisika FMIPA ITS Surabaya dengan judul:

“KARAKTERISASI KOMPOSIT PEG 4000/SiO₂ (SiO₂= KUARSA, AMORF, KRISTOBALIT) DENGAN *DYNAMIC MECHANICAL ANALYSER (DMA)*”

Penulis menyadari bahwa terselesaikannya penyusunan Tesis ini tidak terlepas dari bantuan dan dukungan dari berbagai pihak, maka pada kesempatan ini penulis mengucapkan terima kasih kepada:

1. Prof. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D. selaku dosen pembimbing tesis yang senantiasa memberikan bimbingan, wawasan, dan motivasi sehingga penulis dapat menyelesaikan tesis ini.
2. Prof. Dr. Suasmoro, DEA., dan Dr. M. Zainuri, M.Si, selaku dosen penguji atas saran, kritik, masukan, dan arahnya sehingga memperluas wawasan penulis.
3. Dr. Yono Hadi Pramono, selaku Ketua Jurusan Fisika FMIPA ITS yang telah memberikan kemudahan sarana kepada penulis selama kuliah sampai terselesaikannya tesis ini.
4. Seluruh Staf Pengajar di Jurusan Fisika FMIPA ITS, terimakasih atas pendidikan, ilmu pengetahuan, dan motivasi yang telah diberikan.
5. Keluargaku (Bapak, Ibuk, Mas Faizin, dan Mas Rohmad). Terima kasih atas semangat dan do'a restu yang telah diberikan kepada penulis selama ini.
6. Teman seperjuangan mahasiswa Pascasarjana Fisika angkatan 2013: Musyarofah, Metatia, Umi Nuraini, Zuffa, dan Rizka.
7. Rekan-rekan seperjuangan satu team : Gita, Tiwi, dan Mas Andi yang telah bersedia membantu eksperimen.

8. Dikti yang telah memberikan beasiswa kepada penulis selama studi di Fisika FMIPA ITS (BPP-DN (Calon Dosen)).
9. Segenap pihak yang berkontribusi dalam penyelesaian tesis ini yang tidak dapat penulis sebutkan satu per satu.

Penulis menyadari sepenuhnya atas keterbatasan ilmu pengetahuan dan kemampuan yang dimiliki, oleh karena itu penulis berharap akan menerima kritik dan saran yang bersifat membangun demi kesempurnaan penulisan tesis ini. Semoga penelitian ini dapat bermanfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan serta memberikan inspirasi bagi pembaca untuk perkembangan yang lebih lanjut.

Surabaya, Juni 2015

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
HALAMAN PENGESAHAN.....	iii
ABSTRAK.....	iv
KATA PENGANTAR	vi
DAFTAR ISI	viii
DAFTAR GAMBAR	x
DAFTAR TABEL	xiii
DAFTAR LAMPIRAN.....	xiv
BAB 1 PENDAHULUAN	
1.1. Latar Belakang.....	1
1.1. Perumusan Masalah.....	4
1.2. Tujuan Penelitian.....	4
1.3. Batasan Masalah.....	4
1.4. Manfaat Penelitian.....	5
BAB 2 TINJAUAN PUSTAKA	
2.1. Komposit	7
2.1.1. Matriks	7
2.1.2. Bahan Pengisi (<i>Filler</i>).....	8
2.2. Silika.....	8
2.3. Polietilen Glikol 4000.....	13
2.4. <i>Dynamic Mechanical Analysis</i> (DMA)	13
BAB 3 METODE PENELITIAN	
3.1. Persiapan Alat dan Bahan.....	19
3.1.1. Peralatan	19
3.1.2. Bahan.....	19
3.2. Sintesis Serbuk Silika	19
3.2.1. Sintesis Serbuk Silika Kuarsa (SQ/ <i>Silica Quartz</i>)	19
3.2.2. Sintesis Serbuk Silika Amorf (SA)	20
3.2.3. Sintesis Serbuk Silika Kristobalit (SC/ <i>Silica Cristobalite</i>).....	21
3.3. Sintesis Komposit PEG 4000/SiO ₂	21
3.4. Pengujian dengan DMA	22
3.5. Diagram Alir Penelitian.....	23
3.5.1. Sintesis Serbuk Silika Kuarsa (SQ).....	24

3.5.2.	Sintesis Silika Amorf.....	25
3.5.3.	Sintesis Serbuk Silika Kristobalit (SC)	26
3.5.4.	Sintesis Komposit PEG 4000/SiO ₂	27
BAB 4 HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN		
4.1	Preparasi Serbuk Silika.....	29
4.1.1.	Analisis Bahan Dasar	29
4.1.2.	Hasil Sintesis Serbuk Silika Kuarsa (SQ/ <i>Silica Quartz</i>)	30
4.1.3.	Hasil Sintesis Serbuk Silika Amorf (SA)	32
4.1.4.	Hasil Sintesis Serbuk Silika Kristobalit (SC/ <i>Silica Cristobalite</i>).....	34
4.2.	Analisis Komposit PEG 4000/SiO ₂	36
4.2.1.	Analisis Data Difraksi Komposit PEG 4000/SiO ₂	36
4.2.2.	Analisis Spektroskopi FTIR Komposit PEG 4000/SiO ₂	39
4.3.	Pengujian DMA pada Komposit PEG 4000/SiO ₂	41
4.3.1.	Preparasi Sampel DMA.....	41
4.3.2.	Hasil Keluaran DMA.....	43
4.3.3.	Modulus Penyimpanan pada Komposit PEG 4000/SiO ₂	45
4.3.4.	Faktor Hilang pada Komposit PEG 4000/SiO ₂	50
4.3.5.	<i>Tan δ</i> pada Komposit PEG 4000/SiO ₂	53
4.3.6.	Penentuan <i>Transition Glass Temperature (T_g)</i> Komposit PEG 4000/SiO ₂ dengan DMA	56
4.4.	Kaitan Morfologi dan Sebaran terhadap Sifat Mekanik Komposit PEG 4000/SiO ₂	58
4.4.1.	Morfologi Komposit PEG 4000/SQ	58
4.4.2.	Morfologi Komposit PEG 4000/SA	61
4.4.3.	Morfologi Komposit PEG 4000/SC	63
4.5.	Pembahasan.....	65
BAB 5 KESIMPULAN		
5.1.	Kesimpulan.....	69
5.2.	Saran	70
DAFTAR PUSTAKA		71
LAMPIRAN.....		77
BIOGRAFI PENULIS		87

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Visualisasi struktur atom pada SiO ₂ (a) kuarsa, (b) kristobalit, dan (c) tridimit dengan menggunakan Diamond.....	10
Gambar 2.2	Diagram Fasa SiO ₂	11
Gambar 2.3	Struktur atom pada PEG.	13
Gambar 2.4	Skema pengukuran dengan DMA menggunakan mode (a) tarik (<i>tensile</i>) dan (b) geser (<i>shear</i>).....	14
Gambar 2.5	(a) Material ketika diberikan tegangan sinusoidal akan memberikan respon berupa (b) $\delta = 0^\circ$ untuk material elastik sempurna, (c) $\delta = 90^\circ$ untuk material viskus, dan (d) $0^\circ < \delta < 90^\circ$ untuk material viskoelastik.....	15
Gambar 2.6	Luaran tipikal pengujian DMA untuk material yang mengalami agregasi.....	16
Gambar 2.7	Luaran tipikal pengukuran DMA untuk material yang mengalami deformasi atau transisi gelas.....	16
Gambar 3.1	Foto-foto sintesis serbuk silika amorf menggunakan metode kopresipitasi dengan larutan NaOH 7M.....	21
Gambar 3.2	(a) Instrumen DMA (b) Shear Mode (c) Pergerakan gaya sinusoidal yang bekerja pada sampel.....	22
Gambar 3.3	Diagram alir penelitian secara umum.....	23
Gambar 3.4	Diagram alir sintesis serbuk silika kuarsa (SQ).....	24
Gambar 3.5	Diagram alir sintesis serbuk silika amorf (SA).....	25
Gambar 3.6	Diagram alir preparasi serbuk silika amorf yang telah dikalsinasi (SC).....	26
Gambar 3.7	Diagram alir penelitian... ..	27
Gambar 4.1	Pola Difraksi Sinar-X (Radiasi Cu-K α) dari serbuk silika kuarsa (SQ).....	30
Gambar 4.2	Citra SEM mode elektron sekunder serbuk silika kuarsa (SQ).....	30
Gambar 4.3	Kurva distribusi ukuran partikel serbuk SQ, SA dan SC berdasarkan hasil pengujian menggunakan instrumen <i>Particle Size Analyzer</i> ,	

dengan (1), (2), dan (3) merupakan urutan pengulangan pengujian.	31
Gambar 4.4 Sebaran dan ukuran kristal dari serbuk SQ dengan menggunakan <i>Transmission Electron Micrograph</i> (TEM).....	31
Gambar 4.5 Pola Difraksi Sinar-X (radiasi Cu-K α) dari serbuk SA.....	32
Gambar 4.6 Citra SEM mode elektron sekunder pada serbuk SA.....	33
Gambar 4.7 Sebaran dan ukuran kristal dari serbuk SA dengan menggunakan <i>Transmission Electron Micrograph</i> (TEM).....	33
Gambar 4.8 Pola Difraksi Sinar-X (radiasi Cu-K α) dari serbuk SC.....	34
Gambar 4.9 Citra SEM mode elektron sekunder pada serbuk SC	35
Gambar 4.10 Sebaran dan ukuran kristal dari serbuk SC dengan menggunakan <i>Transmission Electron Micrograph</i> (TEM).....	35
Gambar 4.11 Pola difraksi SQ, PEG 4000, dan komposit PEG 4000/SQ berbagai komposisi.	37
Gambar 4.12 Pola difraksi SA, PEG 4000, dan komposit PEG 4000/SA berbagai komposisi	37
Gambar 4.13 Pola difraksi SC, PEG 4000, dan komposit PEG 4000/SC berbagai komposisi.....	38
Gambar 4.14 Kristalinitas dari komposit (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SC, (c) PEG 4000/SA.....	39
Gambar 4.15 FTIR dari komposit (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SA, (c) PEG 4000/SC.....	41
Gambar 4.16 Sampel DMA dari komposit PEG 4000/SiO ₂ untuk mode <i>shear</i> , dengan variasi penguat berupa serbuk SQ, SA, dan SC	42
Gambar 4.17 Tipikal hasil luaran DMA berupa <i>storage modulus</i> (G'), <i>loss</i> <i>modulus</i> (G''), dan $\tan \delta$ (<i>damping factor</i>) – diwakili oleh komposit dengan penambahan 60 wt% silika kuarsa.	43
Gambar 4.18 Modulus penyimpanan dari (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SA, (c) PEG4000/SC.....	46
Gambar 4.19 Faktor hilang (G'') dari komposit (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SA, (c) PEG 4000/SC... ..	51

Gambar 4.20 Faktor hilang (G') dari komposit PEG 4000/SiO ₂ dengan 80%wt penguat SQ, SA, dan SC.....	53
Gambar 4.21 $Tan \delta$ dari komposit PEG 4000 dengan penguat SQ (a), SA (b), dan SC (c).....	55
Gambar 4.22 Penentuan T_g dari grafik <i>storage modulus</i> terhadap temperatur....	57
Gambar 4.23 Komposit 80 wt% SQ perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.....	59
Gambar 4.24 Komposit 20 wt% SQ perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.....	60
Gambar 4.25 Komposit 80 wt% SA perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.....	61
Gambar 4.26 Komposit 20 wt% SA perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.....	62
Gambar 4.27 Komposit 80 wt% SC perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.....	63
Gambar 4.28 Komposit 20 wt% SC perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.....	64

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1	Data Kristalografi dari Fasa-Fasa Silika (SiO_2).....	10
Tabel 4.1	Prosentase Kandungan Unsur Hasil XRF pada TL Awal, Setelah Magnet, Setelah Penggilingan dan Setelah Pemurnian HCl.....	29
Tabel 4.2	Perbandingan Panjang Gelombang Puncak Spektrum FTIR Referensi dengan Komposit PEG 4000 Berpenguat SQ, SA, dan SC	41
Tabel 4.3	Nilai Absolut Modulus Penyimpanan dari Komposit PEG 4000/ SiO_2 pada Temperatur Kamar.	48
Tabel 4.4	Nilai konstanta (C) Pengisi dalam Menyimpan Energi dari Komposit PEG 4000 dengan Pengisi SQ, SA, dan SC	50
Tabel 4.5	<i>Transition Glass Temperature (T_g)</i> dari Komposit PEG 4000/ SiO_2 dengan Penguat SQ, SA, dan SC.	58

DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran A	Data ICSD dan COD Analisis Data Difraksi Sinar-X.	77
Lampiran B	Penghalusan Rietveld dengan Perangkat Lunak Rietica	81
Lampiran C	Preparasi DMA	83
Lampiran C	Penentuan <i>Transition Glass Temperature</i> (T_g) komposit PEG 4000/SiO ₂ dengan DMA	84

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1. Latar Belakang

Polimer merupakan material fungsional yang memiliki aplikasi luar biasa karena sifatnya yang unik dan dipengaruhi oleh struktur spesifik ikatan silang (*crosslink*) antar rantainya. Pada umumnya, polimer menunjukkan sifat viskoelastik yang dipengaruhi oleh perubahan kondisi lingkungan, seperti temperatur dan gaya. Sehingga dalam aplikasinya, sering kali harus mempertimbangkan sifat viskoelastik polimer terhadap perubahan temperatur dan gaya yang berubah-ubah (Menard, 2008). Sifat viskoelastik menunjukkan kecenderungan material untuk mengalir, kehilangan energi dalam bentuk panas (*damping*), dan kemampuan untuk kembali dari deformasi (elastik).

Polietilen glikol (PEG) merupakan polimer yang secara luas digunakan dalam industri makanan, kosmetik, dan farmasi. PEG merupakan material sintetik yang bersifat stabil, mudah bercampur dengan komponen-komponen lain, tidak beracun, dan tidak iritatif. Salah satu polimer yang secara luas digunakan adalah PEG 4000. PEG 4000 memiliki berat molekul rata-rata 4000 g/mol dan memiliki derajat polimerisasi 68. Derajat polimerisasi menyatakan banyaknya panjang rantai yang terkandung dalam PEG. Sifat mekanik berupa kekuatan tarik (*tensile strength*) dari PEG 4000 relatif rendah yaitu 128 MPa (Feng dkk, 2014), jika dibandingkan dengan bahan keramik yang relatif tinggi, misalnya pada SiO₂ kuarsa (41,1 GPa), SiO₂ kristobalit (39,1 GPa), SiO₂ *glass* (30,9 GPa) (Pabst dkk., 2014), MgO (155 GPa) (Crystran Ltd., 2013), dan Al₂O₃ (162,9 GPa) (ISP Optics, 2001), sehingga sering diperlukan penguat untuk meningkatkan sifat mekanik dari PEG. Silika merupakan salah satu material yang berpotensi digunakan untuk meningkatkan sifat mekanik PEG dengan membuat komposit PEG/SiO₂.

Pasir silika memiliki kandungan silikon dioksida dengan kemurnian tinggi sebagaimana, contohnya, yang telah dilaporkan oleh peneliti sebelumnya (Aristia, 2013). Persebaran pasir silika di Indonesia khususnya di Tanah Laut, Kalimantan Selatan adalah sepanjang pantai Pelabuhan dengan kadar silikon oksida antara

94,4% - 99,0% (Wianto T dan Ninis H.H, 2008).

Pasir silika adalah mineral utama dari silikon dioksida dan dikenal sebagai, misalnya, salah satu mineral pembentuk kristal optik. Silikon dioksida memiliki tiga bentuk polimorf yang paling dominan, yaitu kuarsa (*quartz*), kristobalit dan tridimit. Pada suhu ruang silika tersusun dalam bentuk heksagonal dan kuarsa merupakan fasa kristal yang paling stabil hingga pada suhu $> 875\text{ }^{\circ}\text{C}$, sebagian kuarsa bertransformasi menjadi kristobalit (Hilal, 1987). Dalam kajian sebelumnya tercatat bahwa silika banyak dimanfaatkan untuk berbagai keperluan dengan bergantung pada aplikasi yang dibutuhkan seperti dalam industri ban, karet, gelas, semen, beton, keramik, tekstil, kertas, kosmetik, elektronik, cat, film, pasta gigi, dan lain-lain (Clariant International Ltd, 2014).

Beberapa tahun terakhir pemanfaatan silika sebagai bahan baku komposit keramik telah banyak dilakukan dan merupakan kajian yang menarik serta memberi peningkatan nilai tambah pasir silika. Untuk itu diperlukan terobosan dalam pengolahan pasir silika menjadi silikon dioksida murni sebagai bahan baku. Pemurnian silika yang berasal dari pasir alam dilakukan dengan tujuan untuk mendapatkan silika yang kemudian dapat disintesis menjadi mikro dan nanosilika. Nanosilika merupakan salah satu material yang sangat baik untuk digunakan sebagai penguat (*reinforce*) dalam komposit polimer (Bhandari, H dan Anoop, S., K., S., 2012). Namun demikian, sintesis pemurnian silika berbasis pasir alam hingga mendapatkan material nanosilika membutuhkan waktu relatif lama karena prosesnya yang cukup panjang. Metode yang pernah berhasil dilakukan dalam mensintesis nanosilika berbasis pasir alam adalah metode kopresipitasi dengan prosentase tertinggi kandungan Si rata-rata 95,73% (Hadi, S, 2011). Pemurnian SiO_2 menggunakan metode ekstraksi yaitu dengan menggunakan HCl 2M dan dilakukan perendaman selama 12 jam sehingga unsur-unsur pengotor seperti Ca, Fe, Ti, Cu dapat larut dalam larutan asam kuat (HCl) (Silvia, 2013). Proses ekstraksi tersebut mengalami kenaikan tingkat kemurnian Si sebesar 94,8% dengan penurunan pengotor Ca menjadi 0,85%. Selain itu, dalam penelitian tersebut menggunakan magnet permanen namun sedikit mengurangi kadar Fe yang terdapat dalam pasir silika sebesar 1,84%. Untuk mendapatkan silika dengan kemurnian tinggi, dalam penelitian ini akan diekstraksi menggunakan magnet

permanen secara berulang sebelum pasir silika dihaluskan dengan *wet milling* dan sesudah pasir silika menjadi serbuk, kemudian dilakukan perendaman, dengan menggunakan HCl 2M selama 12 jam. Diharapkan dapat mereduksi impuritas-impuritas atau komposisi yang tidak diharapkan yang ada dalam pasir. Selain itu, telah dilakukan pula metode *alkali fusion* menggunakan medium KOH (Widodo, 2011) dan NaOH (Munasir dkk., 2013). Dalam hal ini akan dihasilkan silika kuarsa setelah pemurnian HCl, silika amorf sebagai hasil dari kopresipitasi, dan akan didapatkan silika kristobalit setelah dilakukan pemanasan pada silika amorf.

Sementara itu, komposit bermatriks PEG telah disintesis sebagai biomaterial dan termo sensitif PEG-PCL-PEG *copolymer/collagen/n-HA* dengan pengisi silika sebagai pengarah pertumbuhan tulang (Fu dkk., 2012). Sintesis komposit PEG juga telah dilaporkan sebagai material penyimpan energi dari *Phase Change Materials* (PCMs) pada sistem solar energi (Tang dkk., 2013). Sedangkan komposit SiO₂-MgO telah dikembangkan sebagai material *seal* pada *fuel cell*, namun porositasnya masih tinggi (30-40)% (Hidayat, N, 2013). Irmansyah pernah mengembangkan komposit bermatriks PEG dengan TiO₂ sebagai penguatnya (Irmansyah dkk., 2008). Komposit ini diaplikasikan sebagai elektroda sel surya. PEG 4000 ditambahkan untuk menghindari adanya kebocoran dan bertindak sebagai perekat antar elektroda. Namun belum terdapat pengujian apakah distribusi komposit tersebut homogen ataukah tidak pada level molekular, dan bagaimanakah sifat viskoelastisnya sebagai karakteristik yang khas dari bahan polimer. Dengan alasan ini, *Dynamic Mechanical Analysis* (DMA) yang sangat sensitif terhadap gerakan molekul dan transisinya (Murayama, T, 1978) dipilih sebagai alat untuk menkarakterisasi sifat tersebut.

Oleh sebab itu, untuk memecahkan beberapa persoalan dari riset yang telah dilakukan terdahulu, dalam penelitian ini akan disintesis komposit PEG 4000/SiO₂ dengan variasi jenis fasa SiO₂ dan ukuran partikel penguatnya serta dikarakterisasi sifat viskoelastisnya menggunakan DMA. Dalam penelitian ini, variasi SiO₂ yang dibuat adalah kuarsa, kristobalit dan amorf, sedangkan variasi ukuran partikel serbuk silika mikron dilakukan dengan cara separasi magnet dan pencucian menggunakan HCl. Sedangkan variasi ukuran partikel serbuk silika nanometrik dilakukan dengan menggunakan metode kopresipitasi, dan kemudian dikalsinasi

untuk mendapatkan ukuran yang lebih besar. Modulus geser (*shear mode*) dan sifat viskoelastik dari bahan komposit apabila diberikan perlakuan suhu yang berubah-ubah akan diukur dari komposit ini. Tiga fasa silika yang digunakan dihasilkan dari pemrosesan secara khusus pasir silika yang berasal dari Tanah Laut, Pelaihari, Kalimantan Selatan. *Shear mode* menunjukkan respon material uji terhadap pergeseran dan perubahan temperatur.

1.2. Perumusan Masalah

Penelitian ini mengkaji pengaruh jenis dan ukuran pengisi silika dalam komposit PEG 4000/SiO₂ terhadap kekuatan mekanik (*shear mode*/modulus geser) dan sifat viskoelastisnya dengan menggunakan DMA. Terdapat beberapa permasalahan yang diangkat pada penelitian ini, yaitu mendapatkan hasil preparasi serbuk silika dengan berbagai ukuran dan morfologi sebagai pengisi komposit PEG 4000/SiO₂, menjelaskan sifat viskoelastik dari bahan komposit yang dibuat, dan mengetahui pengaruh fasa dan ukuran partikel silika terhadap mikrostruktur komposit PEG 4000/SiO₂ yang dihasilkan.

1.3. Tujuan Penelitian

Tujuan penelitian ini adalah:

1. Mendapatkan hasil preparasi serbuk silika dengan berbagai ukuran dan morfologi sebagai pengisi komposit PEG 4000/SiO₂.
2. Mengetahui kekuatan mekanik (*shear mode*/modulus geser), dan sifat viskoelastis komposit PEG 4000/SiO₂ dengan menggunakan DMA.
3. Mengetahui pengaruh jenis fasa dan ukuran partikel silika terhadap mikrostruktur komposit PEG 4000/SiO₂ yang dihasilkan dan mengaitkannya dengan sifat mekanik yang dihasilkan dari pengujian DMA.

1.4. Batasan Masalah

Batasan Masalah pada penelitian ini adalah:

1. Bahan dasar yang digunakan adalah pasir silika dari Tanah Laut Pelaihari, Kalimantan Selatan.
2. Silika yang digunakan dalam penelitian ini adalah silika kuarsa (SQ), silika amorf (SA) dan silika amorf yang telah dikalsinasi pada temperatur 950°C (silika kristobalit / SC).

1.5. Manfaat Penelitian

Hasil dari penelitian ini diharapkan dapat memberikan manfaat sebagai berikut:

1. Memberikan gambaran mengenai pemanfaatan sumber daya alam pasir silika.
2. Memberikan pemahaman tentang bagaimana pengaruh ukuran partikel silika terhadap sifat mekanik pada komposit PEG 4000/SiO₂.

“halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB 2

TINJAUAN PUSTAKA

2.1. Komposit

Komposit dapat didefinisikan sebagai suatu material yang terbentuk dari kombinasi antara dua atau lebih bahan material pembentuknya melalui pencampuran yang homogen, di mana sifat mekanik dari masing-masing material pembentuknya berbeda, sehingga dihasilkan material komposit yang mempunyai sifat mekanik dan karakteristik yang berbeda dari material pembentuknya. Material komposit pada umumnya terdiri dari dua bagian besar bahan dasar, yaitu matriks dan pengisi (*filler*). Bahan komposit tidak akan mengubah struktur mikro dari bahan pembentuknya (dalam orde kristalin), tetapi secara keseluruhan material komposit memiliki sifat yang berbeda dari bahan dasarnya, karena adanya ikatan antar permukaan di antara matriks dan pengisi. Agar terbentuk komposit, maka harus dipenuhi syarat-syarat tertentu, yaitu:

1. Komponen pengisi harus memiliki modulus elastis yang lebih tinggi dibandingkan dengan komponen matriksnya.
2. Harus ada ikatan antar permukaan yang kuat antara komponen filler dengan komponen matriks.

2.1.1. Matriks

Matriks adalah material utama yang akan direkayasa sifatnya dengan menambahkan secara homogen material penguat/pengisi. Hal ini berarti setiap bagian dari matriks akan bercampur sempurna dengan pengisi.

Dalam sintesis komposit, matriks yang biasa digunakan adalah bahan polimer. Polimer adalah bahan yang tersusun atas molekul dengan massa molekul yang besar dan terdiri dari pengulangan unit struktur atau monomer dan dihubungkan dengan ikatan kovalen. Sifat dari polimer dapat dibedakan berdasarkan ukurannya. Pada polimer dengan ukuran nano ataupun mikro, sifatnya secara langsung dijelaskan oleh rantainya sendiri, contoh: polimer dengan

rantai linier lebih mudah larut atau tidak larut dalam air tergantung pada apakah dia tersusun dari monomer-monomer polar atau non polar.

Dalam penelitian ini polimer yang digunakan adalah polietilen glikol 4000 (PEG 4000) sebagai matriks, karena PEG 4000 memiliki sifat stabil, mudah bercampur dengan komponen-komponen lain, tidak beracun, dan tidak iritatif (Biswas dan Abhari, 2014; Clariant International Ltd, 2014). Selain itu PEG 4000 dapat dipakai untuk mengontrol ukuran dan struktur pori (Perdana, 2010).

2.1.2. Bahan Pengisi (*Filler*)

Pengisi merupakan material penguat yang ditambahkan dalam matriks. Pengisi tidak hanya menyempurnakan struktur matriks, tetapi juga digunakan untuk mengubah sifat fisik, seperti misalnya modulus dan konduktivitas panas (*thermal conductivity*). Pengisi yang ditambahkan dalam penelitian ini adalah serbuk silika yang bervariasi bentuk dan fasanya, yaitu silika kuarsa yang berukuran mikron (SQ), silika amorf (SA), dan silika kristobalit (SC).

2.2. Silika

Silika merupakan salah satu material yang ketersediaannya melimpah di alam, misalnya pada pasir kuarsa, batu dan tanah liat. Material-material alam ini banyak digunakan sebagai bahan baku di berbagai industri, seperti manufaktur gelas, keramik dan beberapa industri tradisional (Haus, R dkk., 2012). Untuk memproduksi silika dalam skala industri, seperti silika gel, presipitat silika, dan silika sol (koloid silika), bahan-bahan baku silika yang berasal dari alam perlu diberi perlakuan secara kimia (Hayashi, A, 1991).

Pasir yang banyak mengandung silika disebut pasir silika atau pasir kuarsa. Pasir silika termasuk bahan alam yang terbentuk secara alami melalui berbagai proses antropogenik (Vassilev, S.V dkk., 2012) dan bahan baku alam ini biasanya masih berupa campuran heterogen berbagai unsur, sehingga sifat-sifat material yang dimilikinya pun sulit diprediksi dan diatur. Kandungan pasir berbeda-beda sesuai dengan tempatnya dan memiliki warna sesuai dengan asal pembentuknya. Pasir dari danau atau sungai yang berada di pedalaman pulau, memiliki kandungan silika yang tinggi karena batu-batuan terbentuk dari silika

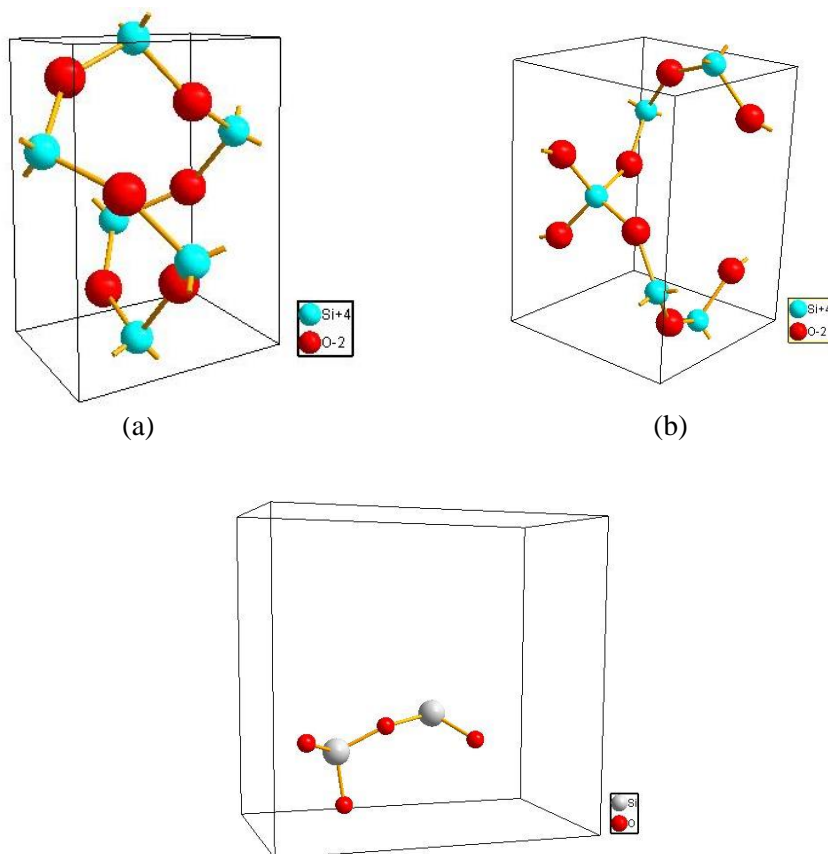
yang pecah menjadi pasir. Pasir silika pada umumnya mengandung senyawa pengotor (*impurities*) seperti oksida besi, oksida kalsium, oksida alkali, oksida magnesium, lempung dan zat organik hasil pelapukan sisa-sisa hewan dan tumbuhan. Endapan pasir silika banyak tersebar di beberapa tempat di Indonesia dengan kadar silikon oksida antara 55,30% - 99,87%. Salah satu daerah yang kaya pasir silika adalah Propinsi Kalimantan Selatan. Persebaran pasir silika di Kabupaten Tanah Laut, Kalimantan Selatan adalah sepanjang pantai Pelaihari dengan kadar silikon oksida antara 94,4% - 99,0 % (Wianto T dan Ninis H.H, 2008).

Penggunaan material alam untuk aplikasi teknologi perlu kajian terlebih dahulu. Maka dari itu perlu adanya studi komposisi fasa pasir silika untuk mengetahui sifat-sifat material tersebut, dan kemudian dapat dimodifikasi sesuai dengan sifat-sifat material yang diinginkan (Gonzalez, R.M dkk., 2003).

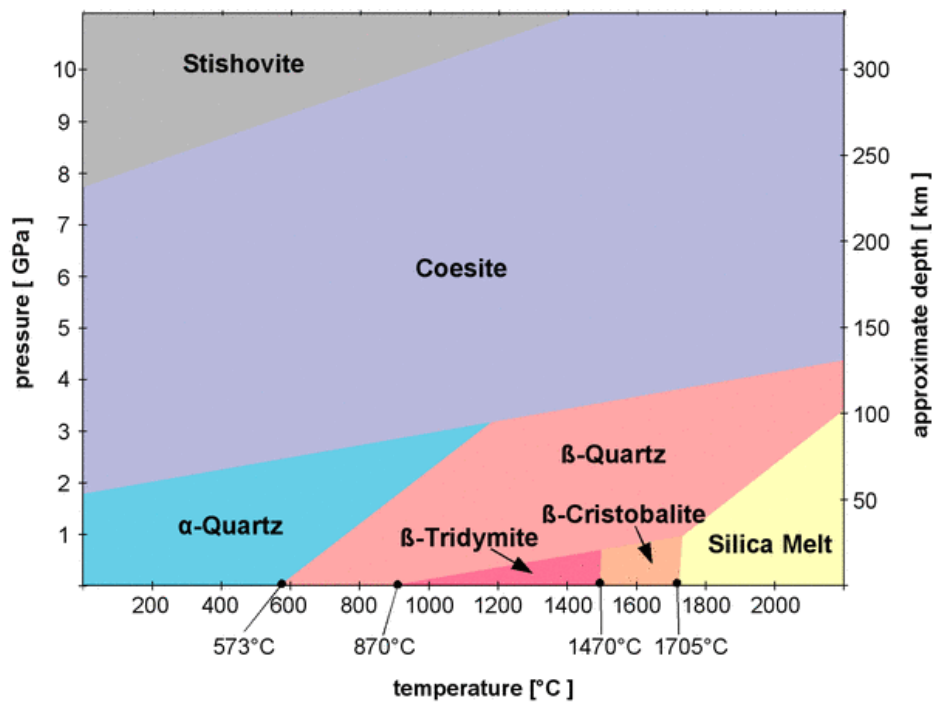
Fasa-fasa yang dapat terbentuk dari silika dengan senyawa SiO_2 adalah kuarsa, kristobalit, dan tridimit (Pabst dkk., 2014). Kuarsa adalah mineral utama dari silika, dengan struktur atom trigonal, di mana satu atom silikon dikelilingi tiga atom oksigen. Pada temperatur kamar, satuan tetrahedral dari silika tersusun dalam suatu susunan heksagonal, tetapi pada temperatur 875°C kestabilan susunan tertrahedral silika berubah. Pada temperatur rendah silika berfasa kuarsa dan pada temperatur tinggi berfasa kristobalit. Di sisi lain, perubahan dari fasa kuarsa ke fasa tridimit memerlukan perubahan besar dalam susunan kristalnya. Tridimit mengalami dua perubahan pada jangkauan metastabilnya, yaitu yang pertama pada temperatur 1170°C dan temperatur 1630°C (Roy, D.M dan Roy, R, 1964).

Tabel 2.1 Data Kristalografi dari Fasa-Fasa Silika (SiO_2).

Fasa Silika	Space Group	Struktur Kristal	Lattice Parameter
Quartz (Nomor PDF 16-2490)	P 32 2 1	Trigonal (Heksagonal)	$a = b = 4,9134 \text{ \AA}$ $c = 5,4051 \text{ \AA}$
Kristobalit (Nomor PDF 76-1390)	P 41 21 2	Tetragonal	$a = b = 4,9780 \text{ \AA}$ $c = 6,9480 \text{ \AA}$
Tridimit (Nomor PDF 21-0442)	P 1	Triklinik	$a = 5,0007 \text{ \AA}$ $b = 8,5909 \text{ \AA}$ $c = 8,2202 \text{ \AA}$



Gambar 2.1 Visualisasi struktur atom pada SiO_2 (a) kuarsa (nomor PDF 16-2490), (b) kristobalit (nomor PDF 76-1390), dan (c) tridimit (nomor PDF 21-0442) dengan menggunakan Diamond (www.crystallography.net).



Gambar 2.2 Diagram fasa SiO_2 (Akhavan, 2012).

Transformasi *quartz* α – *quartz* β yang terjadi pada temperatur 573°C terjadi cepat dan reversibel, sedangkan transformasi lainnya sangat lambat sehingga dibutuhkan waktu yang panjang untuk mencapai kesetimbangan. Oleh karena laju perubahan antara fasa-fasa SiO_2 sangat lambat, maka sering terjadi fasa metastabil. Misalnya selama pendinginan, kristobalit β menjadi kristobalit α dibandingkan menjadi bentuk kuarsa yang seimbang (Suasmoro, 2000). Fasa tridimit tidak dapat dipelajari dalam satu komponen sistem SiO_2 , karena pada kenyataannya modifikasi ini tidak pernah disintesis di laboratorium tanpa menggunakan “*mineralizers*” yang diperkenalkan sebagai ion asing pada sistem dan memerlukan pembelajaran yang lebih rumit (Floerke, O.W, 1955).

Terdapat berbagai metode yang dapat digunakan dalam membentuk nanosilika, yaitu silika dengan ukuran berorde nanometer (10^{-9} m). Material nanosilika dapat diperoleh melalui proses presipitasi yang sangat bergantung pada kondisi sintesis yang meliputi temperatur sintesis, waktu presipitasi, pH, tambahan koagulan, metode pencucian, dan metode pengeringan (Musić, dkk., 2011). Maka dari itu, berbagai parameter sintesis perlu diperhatikan agar bisa

didapatkan nanosilika murni. Dalam penelitian ini digunakan metode sintesis *alkali fusion* yang meliputi proses hidrotermal dan kopresipitasi (Aristia, 2014).

Proses hidrotermal merupakan salah satu metode untuk mendapatkan material anorganik nanokristal. Metode sintesis ini menggunakan kelarutan dalam air, di mana hampir semua kandungan anorganik pada temperatur dan tekanan tertentu terlarut dalam fluida. Air yang dipanaskan memiliki peran penting dalam transformasi prekursor yang digunakan. Terdapat beberapa parameter yang mempengaruhi proses hidrotermal, di antaranya adalah temperatur, tekanan dan waktu. Temperatur memiliki peran yang penting pada kinematika pembentukan produk dan stabilitas termodinamika pada fasa produk. Tekanan memiliki peran yang penting dalam kelarutan material. Selain itu, parameter waktu juga mempengaruhi karena proses sintesis fasa yang stabil secara kinetik terbentuk pada proses yang panjang (Schaf, O dkk., 2004).

Prinsip metode *alkali fusion* adalah membongkar ikatan kimia dalam bahan dengan menggunakan senyawa alkali seperti KOH, NaOH, Na₂CO₃ dan kemudian mengikat silika. Dalam proses ekstraksi silika ini, ada tiga tahapan. Pertama, preparasi natrium silikat (Na₂SiO₃) dari pasir yang mengandung silika dengan menggunakan NaOH. Selama proses *alkali fusion* terjadi reaksi:



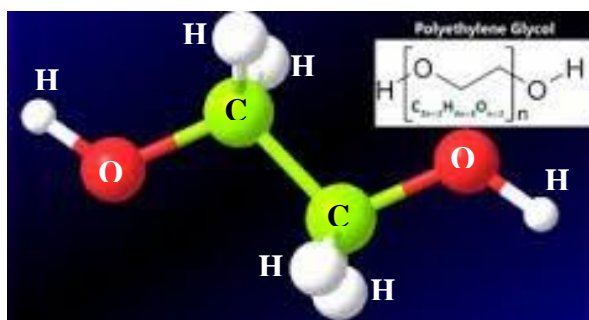
Dari reaksi di atas, terbentuk natrium silikat yang mudah larut dalam air. Kemudian natrium silikat dilarutkan dengan menambahkan air dan mengaduknya. Tahapan kedua adalah melakukan preparasi *silicic acid*, Si(OH)₄. Pada tahapan ini, larutan natrium silikat direaksikan dengan asam kuat (HCl) hingga terbentuk endapan. Reaksi yang terjadi:



Karena Si(OH)₄ tidak bisa larut dalam asam kuat seperti HCl, HNO₃, H₂SO₄. Maka endapan Si(OH)₄ dapat dipisahkan dari larutannya (yang diperoleh dari reaksi 2.2) dengan melakukan penyaringan. Tahap ketiga adalah preparasi SiO₂ dengan memanaskan Si(OH)₄. Pada tahapan ini, reaksi yang terjadi:



2.3. Polietilen Glikol 4000



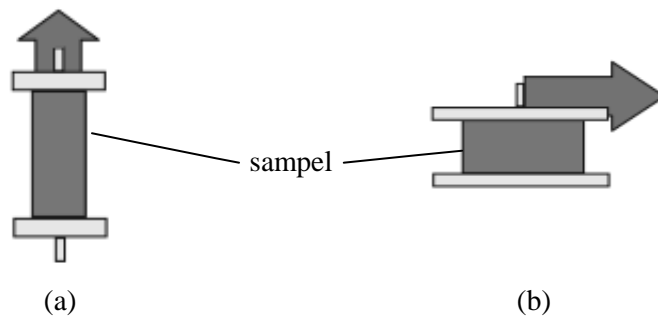
Gambar 2.3 Struktur atom pada PEG (wikimedia.org).

Polietilen glikol (PEG) adalah polimer yang tersusun dari pengulangan sub-unit dari struktur yang sama (monomer). Polietilen glikol menunjukkan oligomer atau oksida polimer etilen. Struktur kimia dari PEG adalah $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$. Angka yang berada di belakang nama PEG menunjukkan berat molekul rata-ratanya. PEG 4000 berarti berat molekul rata-ratanya mendekati 4000 (Unga dkk., 2009). Distribusi ukuran dapat dikarakterisasi secara statistik oleh rata-rata berat molekul (M_w) dan rata-rata jumlah berat molekul (M_n). M_w dan M_n dapat diukur dengan menggunakan spektroskopi massa. Polietilen glikol dapat larut dalam air, metanol, benzena, diklorometana dan tidak larut dalam dietil eter dan heksana. Dietil eter dan heksana adalah pasangan molekul *hydrophobic non-toxic* (tidak beracun) yang dimanfaatkan dalam berbagai macam produk. Di samping untuk obat-obatan, PEG juga dimanfaatkan untuk produk pasta gigi, karena mampu mengikat air.

2.4. Dynamic Mechanical Analysis (DMA)

Instrumen *Dynamic Mechanical Analysis* (DMA) merupakan alat yang digunakan untuk mengukur sifat viskoelastis (kombinasi antara *elastic solid* dan *Newtonian fluid*) bahan polimer (Keskin dkk., 2014). Gaya sinusoidal (*stress*) yang diaplikasikan pada sampel akan menghasilkan *strain* (*sampel displacement*) dengan temperatur dan frekuensi yang dapat divariasi.

Skema pengukuran dengan DMA menggunakan mode tarik (*tensile*) dan geser (*shear*) ditunjukkan Gambar 2.4(a) dan (b). Pada kedua mode seperti yang digambarkan tersebut, gaya diberikan secara vertikal.



Gambar 2.4 Skema pengukuran dengan DMA menggunakan mode (a) tarik (*tensile*) dan (b) geser (*shear*).

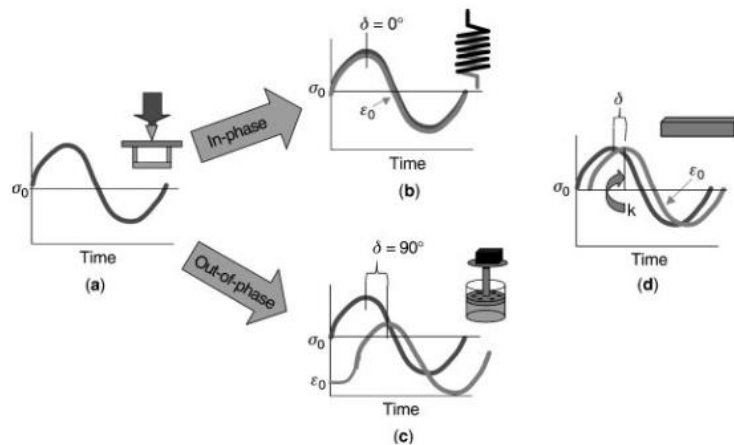
Secara teoretik, menurut Hukum Hook untuk benda elastik atau Hukum Newton untuk benda viskus, sebuah benda yang diberi tegangan (gaya per satuan luas), σ , akan mengalami regangan (rasio perubahan “panjang” per “panjang mula-mula”), ϵ , yang relasinya dinyatakan dengan;

$$\epsilon = E\sigma \dots\dots\dots(2.4)$$

dengan E adalah modulus elastisitas benda tersebut. Pengukuran dengan DMA menggunakan tegangan sinusiodal untuk merekam respon dari material berupa sinyal tegangan yang juga sinusoidal. Jika sinyal respon sefase (*in phase*) dengan tegangan awal, maka material dikatakan elastik sempurna. Sebaliknya, jika sinyal respon berbeda fase sebesar 90° , maka material disebut viskus sempurna. Sebagian besar material berperilaku di antaranya, sehingga dikatakan memiliki sifat viskoelastik. Secara umum, respon yang diberikan material dinyatakan dengan

$$\epsilon(t) = \epsilon_0 \sin (\omega t + \delta) \dots\dots\dots(2.5)$$

dengan ϵ_0 adalah regangan pada tegangan maksimum. Material elastik akan memberikan respon dengan $\delta = 0^\circ$, viskus dengan $\delta = 90^\circ$, sedangkan material viskoelastik $0^\circ < \delta < 90^\circ$. Ilustrasi sinyal respon DMA dapat dilihat pada Gambar 2.5.



Gambar 2.5 (a) Material ketika diberikan tegangan sinusoidal akan memberikan respon berupa (b) $\delta = 0^\circ$ untuk material elastik sempurna, (c) $\delta = 90^\circ$ untuk material viskus, dan (d) $0^\circ < \delta < 90^\circ$ untuk material viskoelastik (Menard, 2008).

Pengukuran dengan DMA mode tarik menghasilkan informasi seputar modulus elastisitas material uji. Modulus elastisitas yang direkam merupakan modulus kompleks, karena gaya sinusoidal yang diberikan menghasilkan respon yang juga sinusoidal tetapi mengalami keteringgalan fasa (*phase lag*). Ada dua komponen modulus kompleks, yaitu modulus penyimpanan (*storage modulus*, bagian riil) dan modulus hilang (*loss modulus*, bagian kompleks).

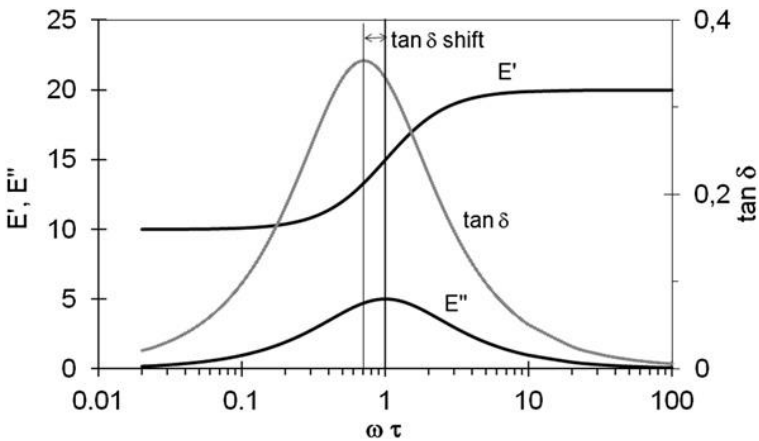
$$E^* = E' + iE'' \dots\dots\dots (2.6)$$

Modulus penyimpanan (*storage modulus*, E') ekivalen dengan modulus elastisitas yang menggambarkan kekakuan (*stiffness*) material. Besaran ini juga merupakan ukuran jumlah energi yang dikembalikan ke sistem secara elastis setelah pemberian regangan. Faktor hilang (*loss modulus*, E'') adalah indikator energi yang terserap matriks yang tidak dikembalikan secara elastik. Sebagai gantinya, energi ini digunakan untuk meningkatkan vibrasi molekuler atau memindah/menggeser (*translate*) posisi rantai polimer.

Pengukuran dengan menggunakan DMA mode geser menghasilkan data berupa modulus penyimpanan (*storage modulus*, G'), faktor hilang (*loss modulus*, G''), dan $\tan \delta$ (Pisello dkk., 2014). Modulus penyimpanan mengukur energi yang tersimpan, yang mewakili daerah elastik. Faktor hilang mengukur energi yang hilang sebagai panas, yang mewakili daerah viskus dan redaman yang dialami

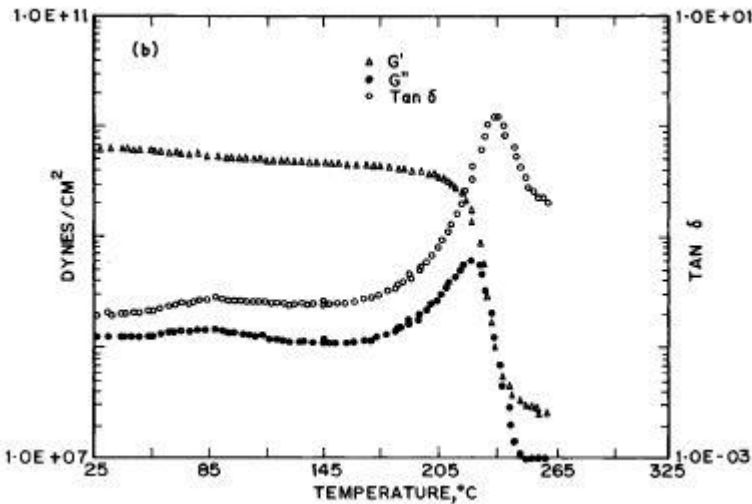
material. $Tan \delta$ menunjukkan perbandingan antara faktor hilang dengan modulus penyimpanan. Secara umum, gabungan antara G' dan G'' adalah modulus kompleks (*complex modulus*, G^*).

$$G^* = G' + iG'' \dots\dots\dots(2.7)$$



Gambar 2.6 Luaran tipikal pengujian DMA untuk material yang mengalami agregasi (Stark, 2013).

Luaran tipikal pengukuran DMA untuk material yang mengalami agregasi ditunjukkan seperti Gambar 2.6, sedangkan untuk material yang mengalami deformasi atau transisi gelas ditunjukkan Gambar 2.7.



Gambar 2.7 Luaran tipikal pengukuran DMA untuk material yang mengalami deformasi atau transisi gelas (Charati dkk., 1994).

Salah satu luaran terpenting dari hasil pengukuran DMA adalah *glass transition temperature* (T_g) dari polimer. Besaran ini dapat digunakan untuk mengkarakterisasi bagian amorf dan kristalin dari bahan polimer yang merupakan semikristalin. Material amorf memiliki T_g yang berbeda dengan kristalin. Modulus penyimpanan (G') bahan akan turun secara drastis seiring dengan penurunan elastisitas. Dengan demikian DMA mampu menjelaskan sifat viskoelastis bahan polimer.

“halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB 3

METODE PENELITIAN

Tujuan dari penelitian ini adalah sintesis dan karakterisasi komposit PEG 4000/SiO₂ dengan *Dynamic Mechanical Analysis* (DMA). Metode penelitian ini akan diuraikan menjadi empat bagian, yaitu (1) persiapan alat dan bahan, (2) sintesis serbuk silika (silika kuarsa (SQ), silika amorf (SA), dan silika kristobalit (SC)), (3) sintesis komposit, dan (4) pengujian dengan instrumen DMA.

3.1. Persiapan Alat dan Bahan

3.1.1. Peralatan

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah *planetary ball mill*, bola zirconia, oven, neraca digital, pengaduk magnetik, kertas saring, kertas pH, ayakan 100 mesh, mortar, alat *pressing*, krusibel, dan *furnace* tipe RHF 1400.. Sedangkan peralatan yang digunakan untuk karakterisasi adalah Spektrometer *X-Ray Fluorescence* (XRF), Spektrometer *Energy Dispersion X-Ray* (EDX), Difraktometer Sinar-X (XRD), *Particle Size Analyzer* (PSA), *Scanning Electron Microscopy* (SEM), Spektrometer *Fourier Transform Infrared* (FTIR), *Dynamic Mechanical Analysis* (DMA).

3.1.2. Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah pasir silika Tanah Laut, Pelaihari, Kalimantan Selatan, Polyethylene glycol 4000 (PEG), NaOH 99%, HCl 37%, alkohol 96%, aquades.

3.2. Sintesis Serbuk Silika

3.2.1. Sintesis Serbuk Silika Kuarsa (SQ/*Silica Quartz*)

Pasir alam didapatkan dari Tanah Laut, Pelaihari, Kalimantan Selatan. Pasir dicuci dengan aquades dan dikeringkan pada suhu $\pm 80^{\circ}\text{C}$ selama 12 jam. Kemudian dilakukan pengujian XRF untuk mengetahui unsur-unsur yang

terkandung di dalam pasir alam tersebut. Selanjutnya dilakukan ekstraksi menggunakan magnet permanen untuk mengurangi *magnetic compound* dalam pasir, kemudian dilakukan uji XRF.

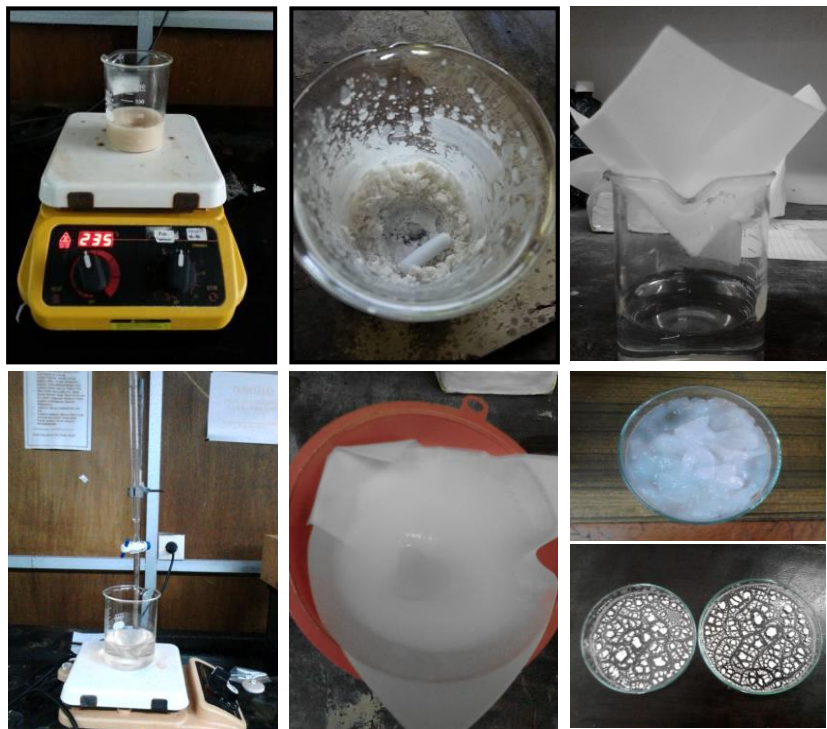
Pasir dihaluskan dengan metode *wet milling* yang menggunakan medium alkohol selama 1 jam dengan kecepatan 150 putaran per menit (ppm) dengan bola zircon. Kemudian, pasir dikeringkan dengan temperatur 50°C selama 12 jam dan dilakukan uji XRF.

Guna meningkatkan kemurnian serbuk silika, dilakukan proses *stirring* dengan HCl 2M selama 30 menit dan perendaman selama 12 jam. Perbandingan silika dan HCL adalah 1 gr : 30 ml. Setelah proses perendaman, endapan serbuk dinetralkan (hingga pH ± 7) dengan aquades kemudian dikeringkan. Maka, didapatkanlah serbuk silica quartz yang selanjutnya diuji XRF dan XRD untuk mengetahui kandungan unsur dan fasanya. Serbuk silika kuarsa diuji PSA untuk mengetahui ukuran partikel dan didukung dengan TEM untuk mengetahui ukuran kristal dan mengkonfirmasi hasil PSA.

3.2.2. Sintesis Serbuk Silika Amorf (SA)

Serbuk pasir silika dilarutkan ke dalam larutan NaOH 7M dan diaduk menggunakan pengaduk magnetik dengan temperatur 300°C selama 2 jam. Sampel kemudian dilarutkan kembali dengan 200 ml aquades dan disaring menggunakan kertas saring. Larutan yang lolos saring merupakan larutan natrium silikat (Na_2SiO_3).

Larutan natrium silikat kemudian digunakan pada proses kopresipitasi. Sampel diaduk menggunakan pengaduk magnetik, kemudian dititrasi menggunakan larutan HCl 2M hingga pH larutan yang semula 14 berubah menjadi 7. Sampel dibiarkan mengendap selama 24 jam, dan dilakukan pencucian menggunakan aquades untuk menghilangkan kandungan garam (NaCl) yang terbentuk pada proses sebelumnya. Setelah itu, sampel dikeringkan dengan temperatur 80°C selama 24 jam, sehingga didapatkan serbuk silika amorf (SA). Untuk mengetahui fasa amorf pada serbuk SA dilakukan pengujian XRD. Serbuk silika amorf diuji PSA untuk mengetahui ukuran partikel dan didukung dengan TEM untuk mengetahui ukuran kristal dan mengkonfirmasi hasil PSA.



Gambar 3.1 Foto-foto sintesis serbuk silika amorf menggunakan metode kopresipitasi dengan larutan NaOH 7M.

3.2.3. Sintesis Serbuk Silika Kristobalit (SC/*Silica Cristobalite*)

Sampel silika amorf (SA) dikarakterisasi menggunakan DSC/TGA untuk mengetahui karakteristik sampel terhadap perlakuan panas yang diberikan. Sampel SA dikalsinasi pada temperatur 950°C dengan waktu penahanan selama 8 jam untuk mendapatkan silika dengan fasa kristobalit. Sampel setelah kalsinasi diuji XRD untuk mengetahui komposisi fasa yang ada, dan diuji PSA untuk mengetahui ukuran partikel dan didukung dengan TEM untuk mengetahui ukuran kristal dan mengkonfirmasi hasil PSA.

3.3. Sintesis Komposit PEG 4000/SiO₂

Sintesis komposit PEG 4000/SiO₂ dilakukan dengan mencampurkan PEG 4000 dan silika dengan perbandingan berturut-turut (0, 20, 40, 80)%wt silika, menggunakan mortar selama 30 menit. Sintesis komposit PEG 4000/SiO₂ ini dilakukan dengan variasi jenis serbuk silika, yaitu sampel SQ, SA, dan SC. Untuk

mengetahui ikatan antara PEG dan silika dilakukan uji FTIR dalam bentuk serbuk. Selanjutnya campuran serbuk dimasukkan ke dalam cetakan silinder dengan diameter $1,45 \pm 0,05$ cm dan ditekan dengan beban 4500 N untuk mendapatkan bentuk pelet dengan ketebalan 1 mm dan dipanaskan selama 30 menit pada temperatur 50°C untuk menumbuhkan *necking* antara silika dan PEG 4000. Kemudian diuji XRD untuk mengetahui keberhasilan terbentuknya komposit, sebagai pendukung data FTIR, serta dilakukan pengujian SEM EDX untuk mengetahui sebaran silika dan PEG dalam komposit, mengetahui morfologi awal dari komposit sebelum dilakukan pengujian DMA.

3.4. Pengujian dengan DMA

DMA yang digunakan pada penelitian ini adalah Mettler Toledo SDTA861^e, dengan mode pengukuran *shear*. Pengukuran modulus terhadap fungsi temperatur dilakukan pada rentang temperatur 25° hingga 80°C tanpa menggunakan pendingin nitrogen pada frekuensi 1 Hz dengan *displacement* $1\mu\text{m}$. Dalam pengujian menggunakan DMA harus memperhatikan geometri sampel, sehingga sampel disiapkan dengan dimensi $(5 \times 5 \times 1) \text{ mm}^3$. Kemudian sampel siap untuk diuji DMA untuk mengetahui modulus geser dan sifat viscoelastik (*Glass Transition*, relaksasi, pelelehan) dari bahan polimer yang dapat diplot dengan skala logaritmik. Pemasangan sampel sesuai dengan prosedur yang ada (Gambar 3.2).



(a)



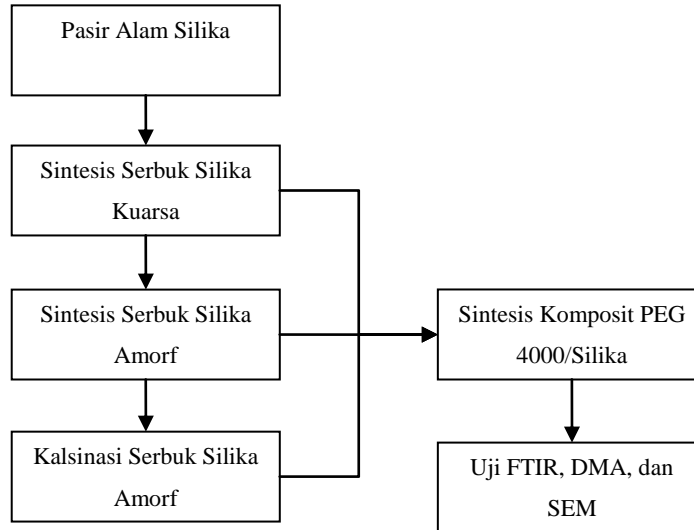
(b)



(c)

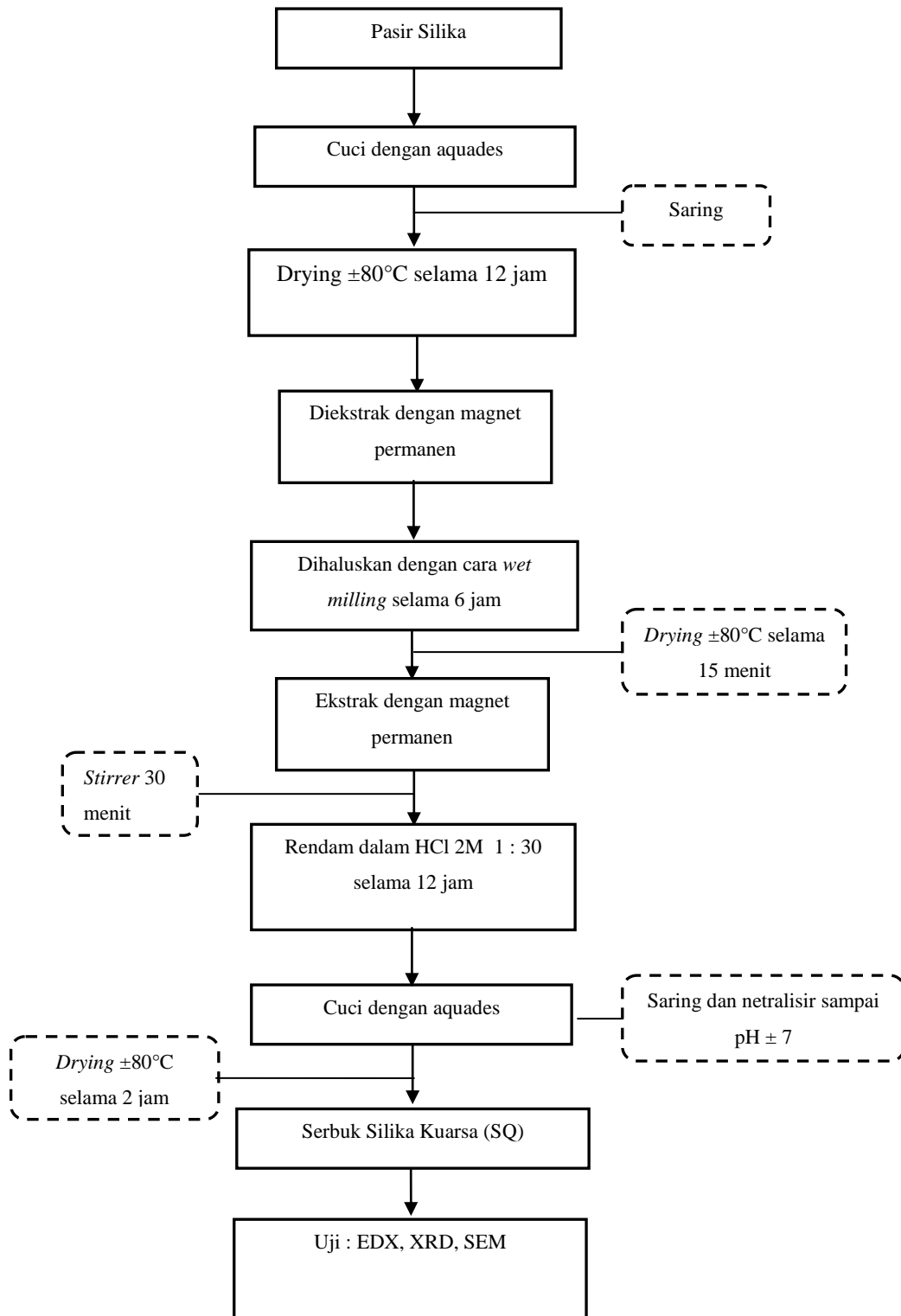
Gambar 3.2 (a) Instrumen DMA (b) Shear Mode (c) Pergerakan gaya sinusoidal yang bekerja pada sampel.

3.5. Diagram Alir Penelitian



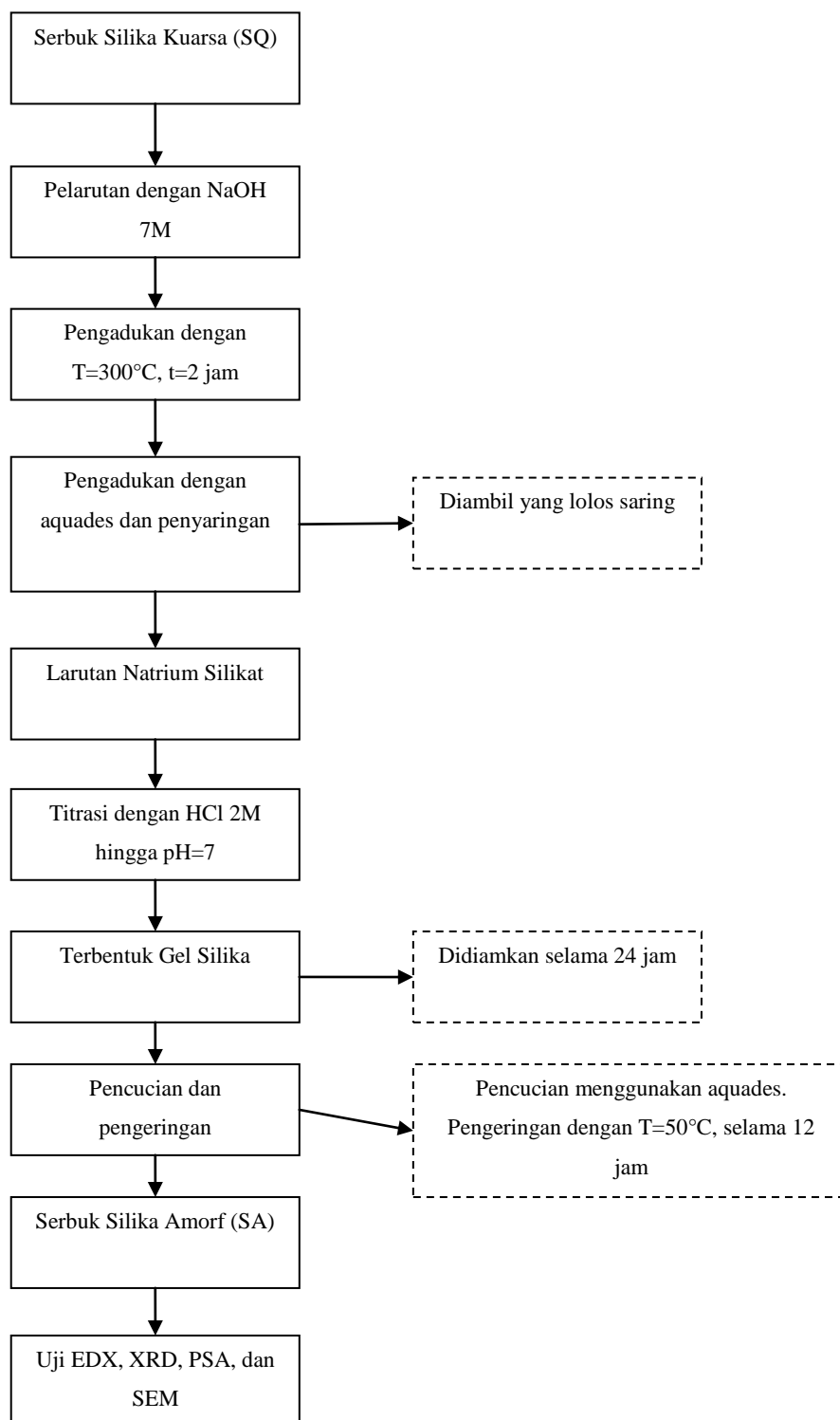
Gambar 3.3 Diagram alir penelitian secara umum.

3.5.1. Sintesis Serbuk Silika Kuarsa (SQ)



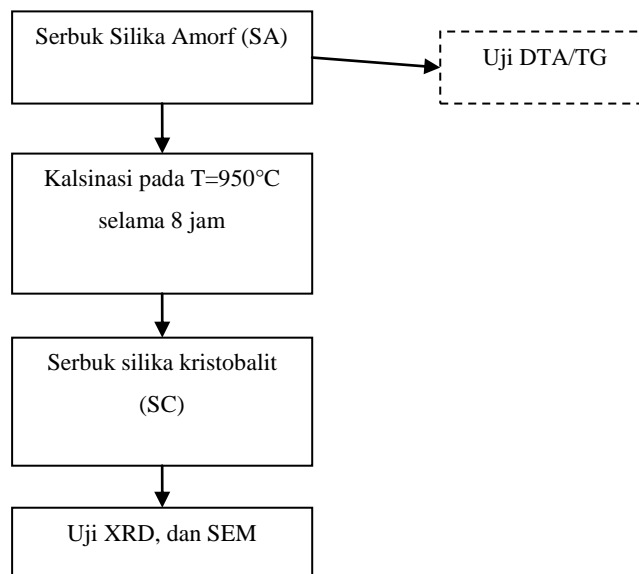
Gambar 3.4 Diagram alir sintesis serbuk silika kuarsa (SQ).

3.5.2. Sintesis Silika Amorf



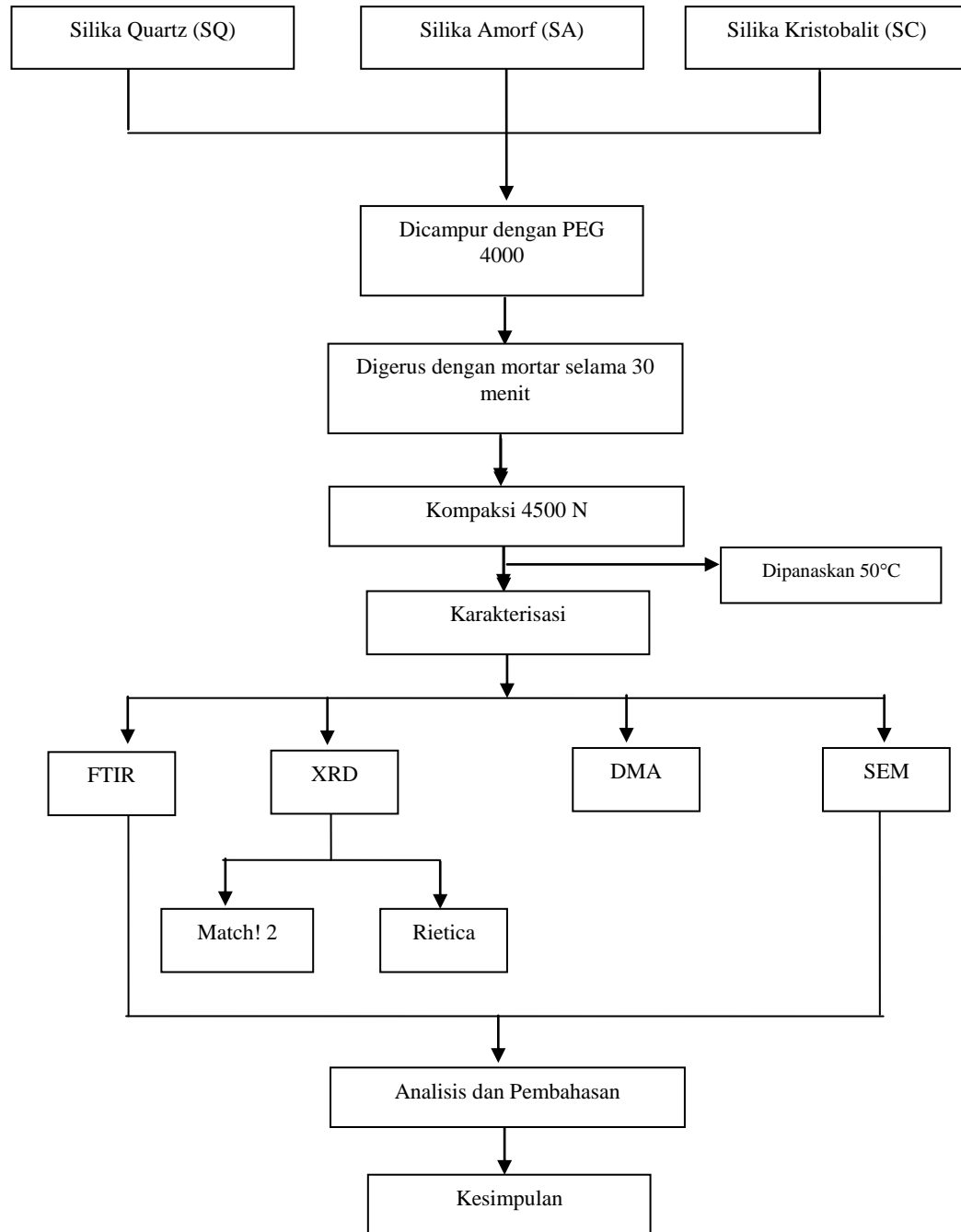
Gambar 3.5 Diagram alir sintesis serbuk silika amorf (SA).

3.5.3. Sintesis Serbuk Silika Kristobalit (SC)



Gambar 3.6 Diagram alir preparasi serbuk silika amorf yang telah dikalsinasi (SC).

3.5.4. Sintesis Komposit PEG 4000/SiO₂



Gambar 3.7 Diagram alir penelitian.

“halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB 4

HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

4.1. Preparasi Serbuk Silika

4.1.1. Analisis Bahan Dasar

Bahan dasar yang digunakan dalam penelitian ini adalah pasir silika yang berasal dari Tanah Laut, Kalimantan Selatan. Proses pemurnian silika dengan menggunakan pemisahan magnetik, penggilingan dan pemurnian HCl sehingga didapatkan silika dengan kandungan unsur seperti ditunjukkan Tabel 4.1.

Tabel 4.1 Prosentase Kandungan Unsur Hasil XRF pada TL Awal, Setelah Magnet, Setelah Penggilingan dan Setelah Pemurnian HCl (at%).

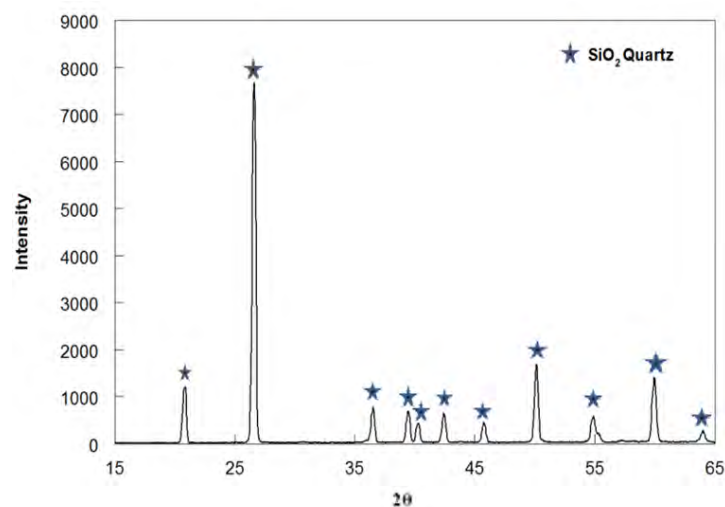
Unsur	TL Awal	Setelah Magnet	Setelah Penggilingan	Setelah HCl
Si	89,44	93,30	95,69	95,87
Cr	3,06	-	0,15	0,30
Al	2,54	3,19	1,44	1,21
Ti	1,27	0,49	0,49	0,42
Cl	1,17	1,46	0,91	0,95
Fe	1,15	0,15	0,19	0,25
P	0,44	0,87	-	-
S	0,29	0,47	0,25	0,23
Zr	0,25	0,04	0,82	0,76
La	0,21	-	-	-
Ce	0,06	-	0,04	-
V	0,04	-	-	-
Sn	0,04	0,04	0,02	-
Mn	0,04	-	-	-
Total	100,00	100,00	100,00	100,00

Pasir silika setelah pemurnian HCl inilah kemudian disintesis menjadi serbuk silika kuarsa (SQ), silika amorf (SA), dan silika kristobalit (SC). Hasil karakterisasi serbuk-serbuk tersebut disajikan pada tiga sub bab berikut ini.

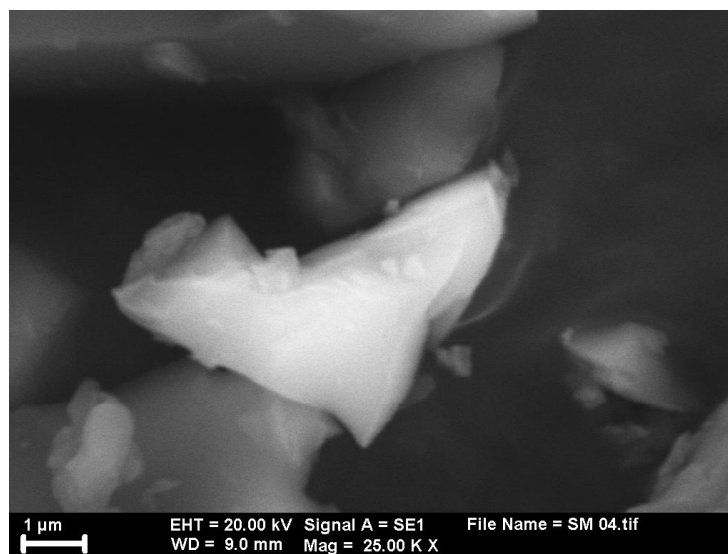
4.1.2. Hasil Sintesis Serbuk Silika Kuarsa (SQ/*Silica Quartz*)

Serbuk silika kuarsa (SQ) memiliki pola difraksi dengan puncak-puncak fasa kristalin yang cukup tajam, dari identifikasi fasa diketahui bahwa puncak-puncak tersebut berasal dari fasa SiO_2 kuarsa (nomor PDF 16-2490), ditunjukkan pada Gambar 4.1. Mikrostruktur serbuk silika kuarsa ini ditunjukkan Gambar 4.2.

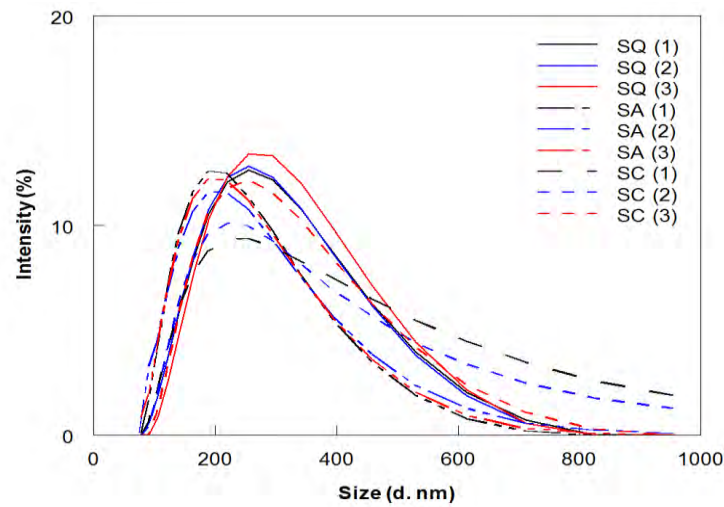
Ukuran partikel silika kuarsa dengan menggunakan *Particle Size Analyzer* (PSA) didapatkan 349 nm (Gambar 4.3), sedangkan sebaran dan ukuran kristal dari serbuk silika kuarsa (SQ) ditunjukkan pada Gambar 4.4.



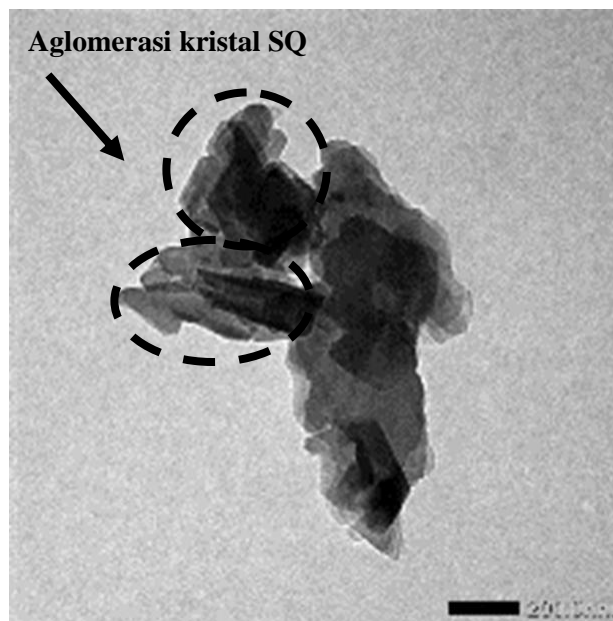
Gambar 4.1 Pola Difraksi Sinar-X (Radiasi Cu-K α) dari serbuk silika kuarsa (SQ).



Gambar 4.2 Citra SEM mode elektron sekunder serbuk silika kuarsa (SQ).



Gambar 4.3 Kurva distribusi ukuran partikel serbuk SQ, SA dan SC berdasarkan hasil pengujian menggunakan instrumen *Particle Size Analyzer*, dengan (1), (2), dan (3) merupakan urutan pengulangan pengujian.



Gambar 4.4 Sebaran dan ukuran kristal dari serbuk SQ dengan menggunakan *Transmission Electron Micrograph* (TEM).

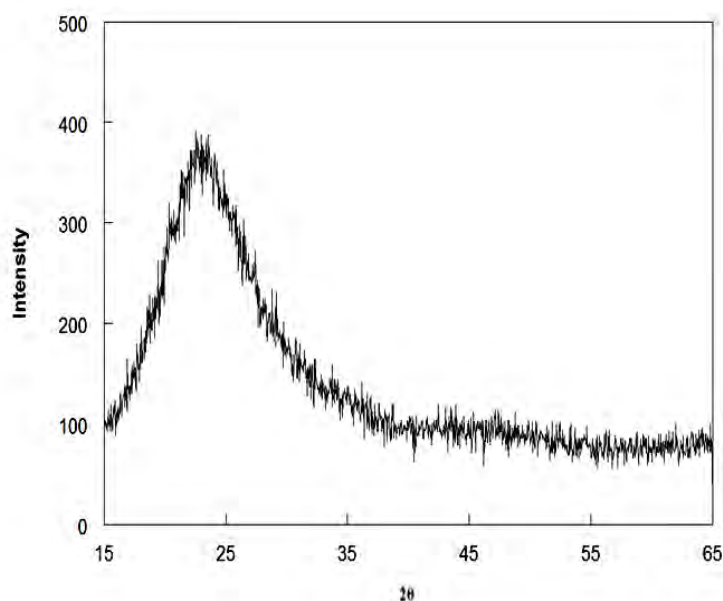
Kristal kuarsa cenderung beraglomerasi seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.4. Aglomerasi inilah (ditunjuk dengan anak panah dan lingkaran hitam dari hasil TEM) dapat yang mengkonfirmasi hasil PSA (349 nm) sebagai ukuran partikel serbuk SQ, sedangkan ukuran kristal serbuk SQ diperkirakan 200 nm

dengan bentuk memanjang, cenderung segitiga sesuai dengan citra SEM pada Gambar 4.2.

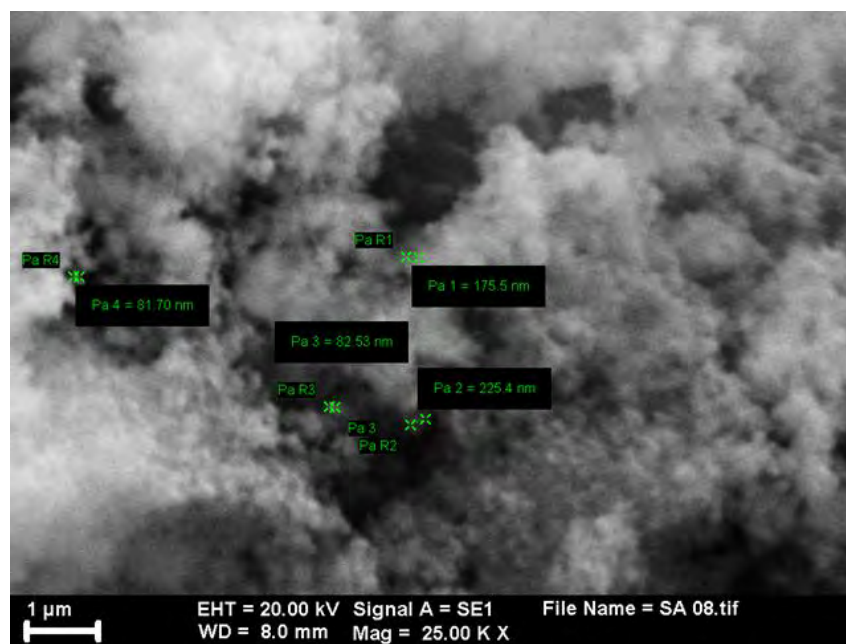
4.1.3. Hasil Sintesis Serbuk Silika Amorf (SA)

Serbuk silika amorf (SA) didapatkan dari proses kopresipitasi dan dikarakterisasi menggunakan difraktometer sinar-X, sehingga didapatkan pola difraksi pada Gambar 4.5 dan mikrostrukturnya ditunjukkan dari Gambar 4.6.

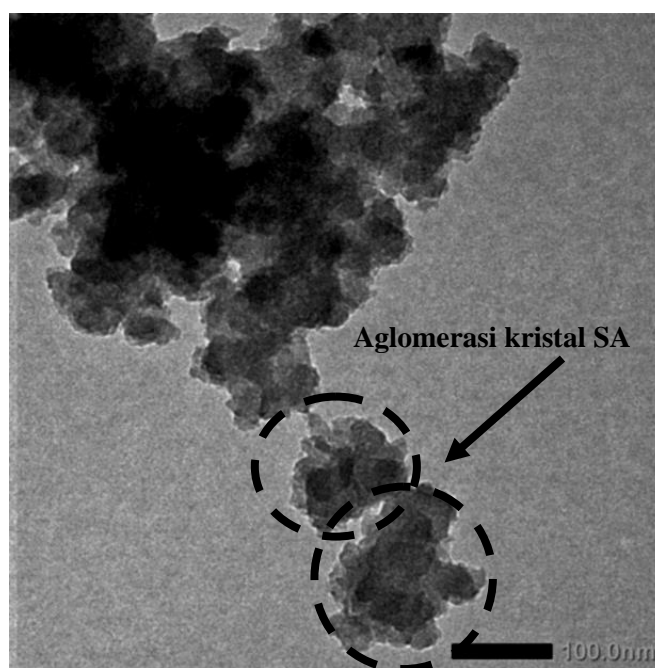
Kecenderungan serbuk SA yang beraglomerasi didukung dengan pengujian PSA (ukuran partikel 204 nm), lebih lanjut dikonfirmasi dengan SEM dan TEM. Pengamatan SEM dilakukan dengan mode elektron sekunder dengan perbesaran 25.000 kali, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.6. Pada citra SEM tersebut nampak bahwa ukuran partikel serbuk silika amorf tidak seragam, beraglomerasi, dan ukurannya cenderung nanometrik. Fenomena ini didukung dengan hasil pengujian TEM (Gambar 4.7), terlihat bahwa kristal SA tidak berbentuk, beraglomerasi dengan skala 200 nm (ditunjuk dengan anak panah dan lingkaran hitam) yang sesuai dengan hasil PSA (Gambar 4.3).



Gambar 4.5 Pola Difraksi Sinar-X (radiasi Cu-K α) dari serbuk SA.



Gambar 4.6 Citra SEM mode elektron sekunder pada serbuk SA.



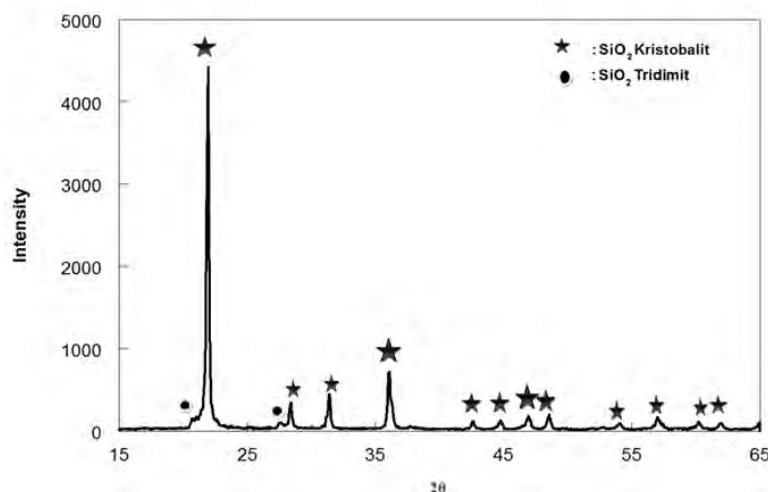
Gambar 4.7 Sebaran dan ukuran kristal dari serbuk SA dengan menggunakan *Transmission Electron Micrograph* (TEM).

4.1.4. Hasil Sintesis Serbuk Silika Kristobalit (SC/*Silica Cristobalite*)

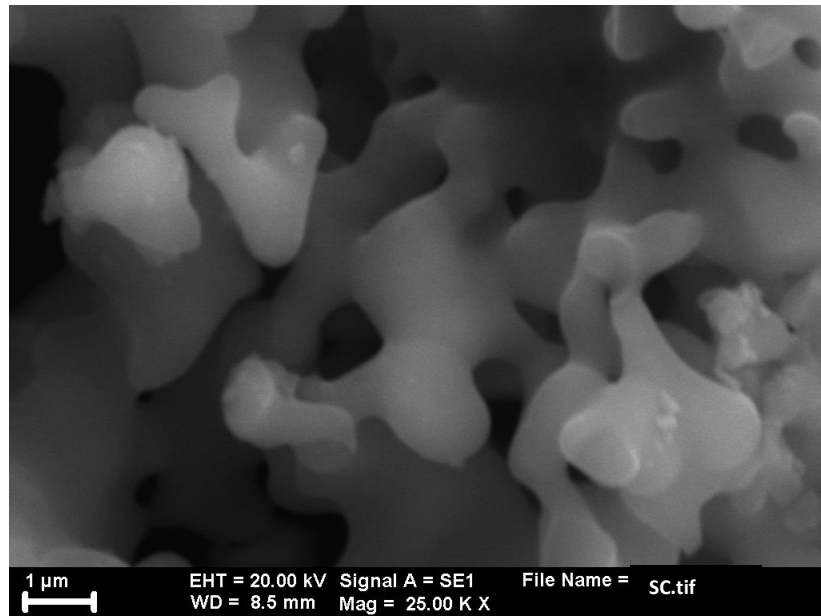
Serbuk silika amorf dikalsin untuk mendapatkan serbuk silika kristobalit. Setelah melalui kajian eksperimental dengan berbagai temperatur kalsinasi, didapatkan kesimpulan bahwa kandungan kristobalit tertinggi dapat dicapai melalui kalsinasi pada temperatur 950 °C selama 8 jam (Aristia, 2014). Sehingga pada penelitian ini serbuk silika amorf dikalsin pada temperatur tersebut selama 8 jam untuk mendapatkan silika kristobalit (SC).

Serbuk silika amorf yang dikalsinasi pada temperatur 950 °C memiliki pola difraksi (Gambar 4.8) dengan puncak-puncak fasa kristalin yang cukup tajam sesuai dengan fasa *high cristobalite* (nomor PDF 76-1390). Namun, analisis data difraksi lebih lanjut menunjukkan masih adanya fasa tridimit (SiO_2 , nomor PDF 21-0442) sebesar 1,18%wt.

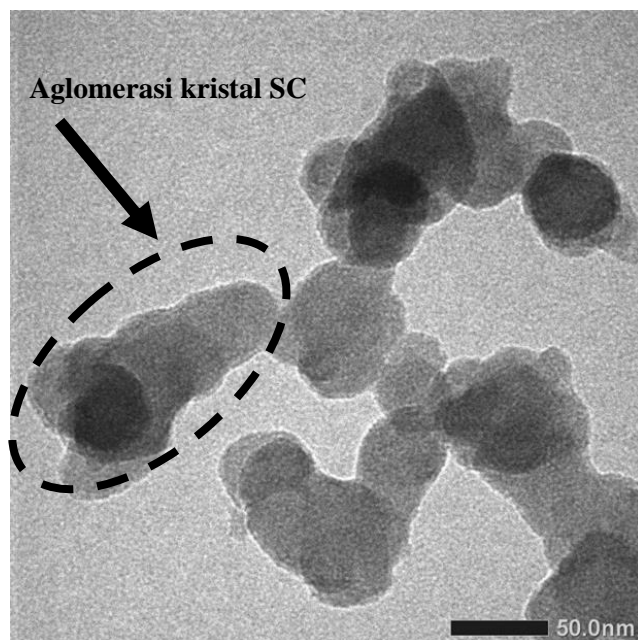
Mikrostruktur silika kristobalit diketahui dengan menggunakan SEM (Gambar 4.9), didukung dengan TEM (Gambar 4.10), dan dengan PSA diketahui ukuran partikelnya, yaitu sebesar 258 nm (Gambar 4.3).



Gambar 4.8 Pola Difraksi Sinar-X (radiasi Cu-K α) dari serbuk SC.



Gambar 4.9 Citra SEM mode elektron sekunder pada serbuk SC.



Gambar 4.10 Sebaran dan ukuran kristal dari serbuk SC dengan menggunakan *Transmission Electron Micrograph* (TEM).

Ukuran partikel serbuk SC dikonfirmasi dengan hasil TEM pada Gambar 4.10, yang ditunjukkan dengan lingkaran hitam. Ukuran kristal SC terlihat lebih seragam dan kristal dari silika kristobalit sudah tumbuh, dengan ukuran kristal berkisar pada nilai 50 nm.

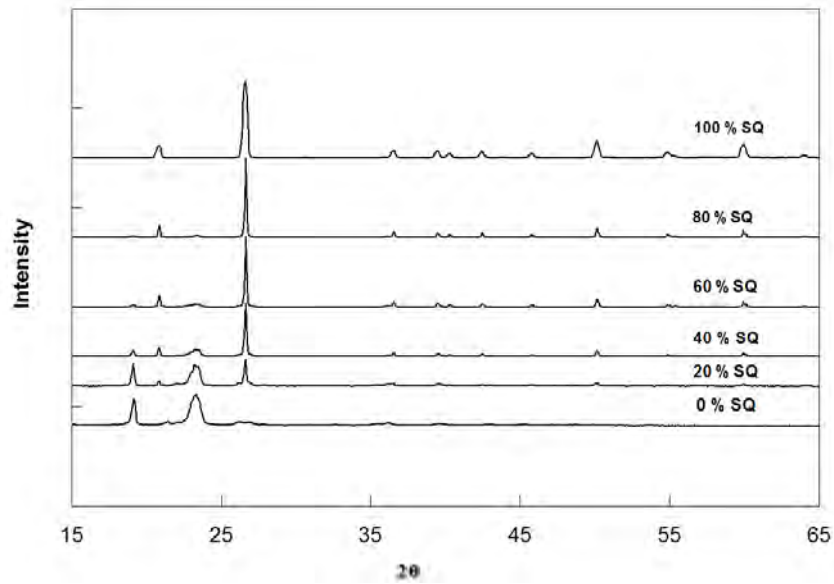
Sebagai kesimpulan, sampel-sampel serbuk silika yang digunakan sebagai pengisi komposit PEG 4000/SiO₂ dalam penelitian ini adalah serbuk silika kuarsa (SQ), serbuk silika amorf (SA) dan serbuk silika kristobalit (SC). Dari gambar mikrostruktur dapat diketahui bahwa serbuk silika amorf tak berbentuk dan memiliki kecenderungan untuk beraglomerasi lebih tinggi dibandingkan dengan serbuk yang lain. Dengan memperhatikan perbedaan mikrostruktur dari SiO₂ yang digunakan akan memiliki pengaruh besar terhadap kualitas ikatan antara polimer PEG 4000 dan SiO₂ sebagai penguatnya, sehingga akan mempengaruhi kekuatan mekanik yang dimiliki komposit (Lin dkk., 2015).

4.2. Analisis Komposit PEG 4000/SiO₂

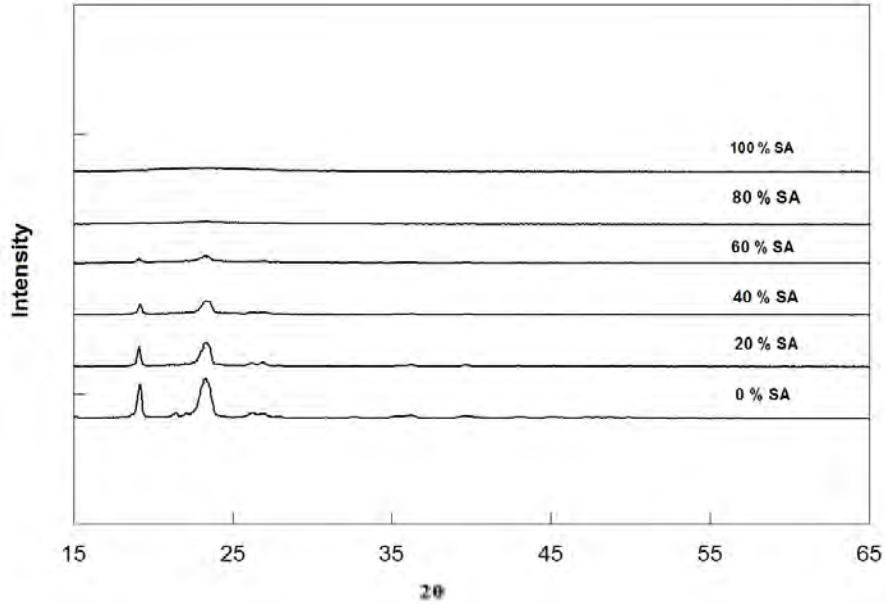
4.2.1. Analisis Data Difraksi Komposit PEG 4000/SiO₂

Komposit PEG 4000/SiO₂ yang telah disintesis dengan *solid state reaction* dikarakterisasi menggunakan difraktometer sinar-X, dengan pola difraksi seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.11 - 4.13. PEG 4000 dan SiO₂ telah berhasil terbentuk komposit, karena dari hasil XRD tidak terbentuk fasa baru dan tidak mengalami reaksi kimia, sehingga antara PEG 4000 sebagai matriks masih dapat dibedakan dengan SiO₂ sebagai pengisi.

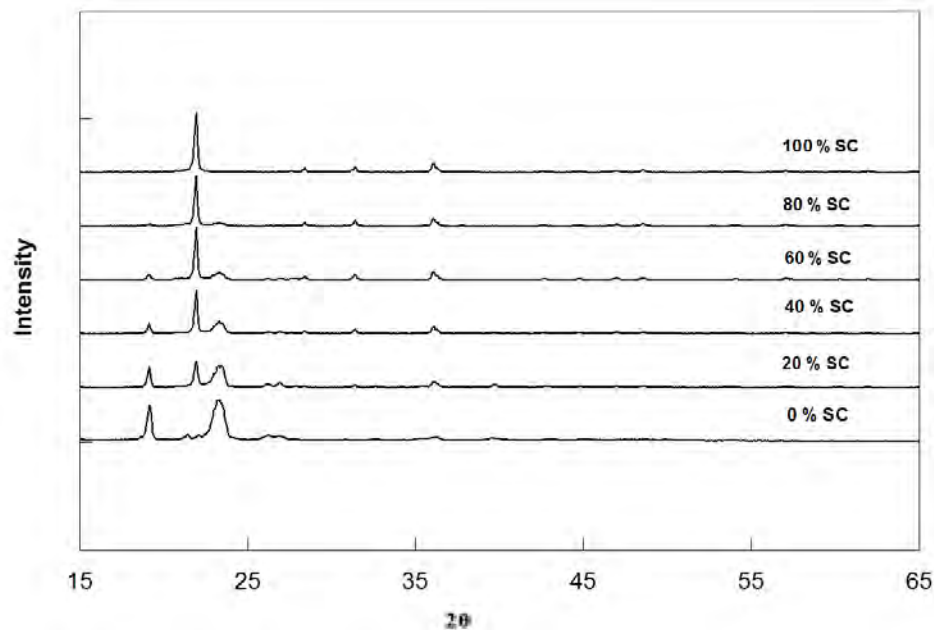
Hasil XRD juga dapat menunjukkan tingkat kristalinitas masing-masing komposit. Seiring dengan penambahan SQ dan SC, persentase kristalinitasnya akan semakin meningkat. Hasil ini sangat berbeda dengan pola penambahan SA. Semakin banyak serbuk SA yang ditambahkan dalam komposit, sesuai harapan, semakin turun persentase kristalinitasnya, karena SA yang berstruktur amorf.



Gambar 4.11 Pola difraksi SQ, PEG 4000, dan komposit PEG 4000/SQ berbagai komposisi.

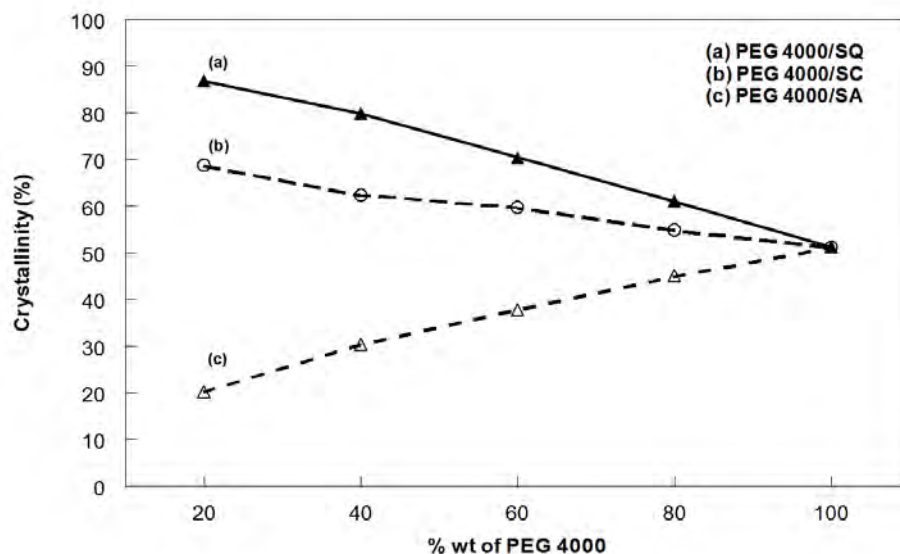


Gambar 4.12 Pola difraksi SA, PEG 4000, dan komposit PEG 4000/SA berbagai komposisi.



Gambar 4.13 Pola difraksi SC, PEG 4000, dan komposit PEG 4000/SC berbagai komposisi.

Untuk mengetahui komposisi fasa kristalin dan amorf pada sampel komposit, perlu dilakukan analisis derajat kristalinitas. Hasil analisis menunjukkan bahwa derajat kristalinitas pada komposit dengan penguat SQ dan SC semakin meningkat seiring dengan penambahan silika. Sedangkan derajat kristalinitas pada SA mengalami penurunan seiring dengan penambahan SA seperti ditunjukkan pada Gambar 4.14.



Gambar 4.14 Kristalinitas dari komposit (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SC, (c) PEG 4000/SA.

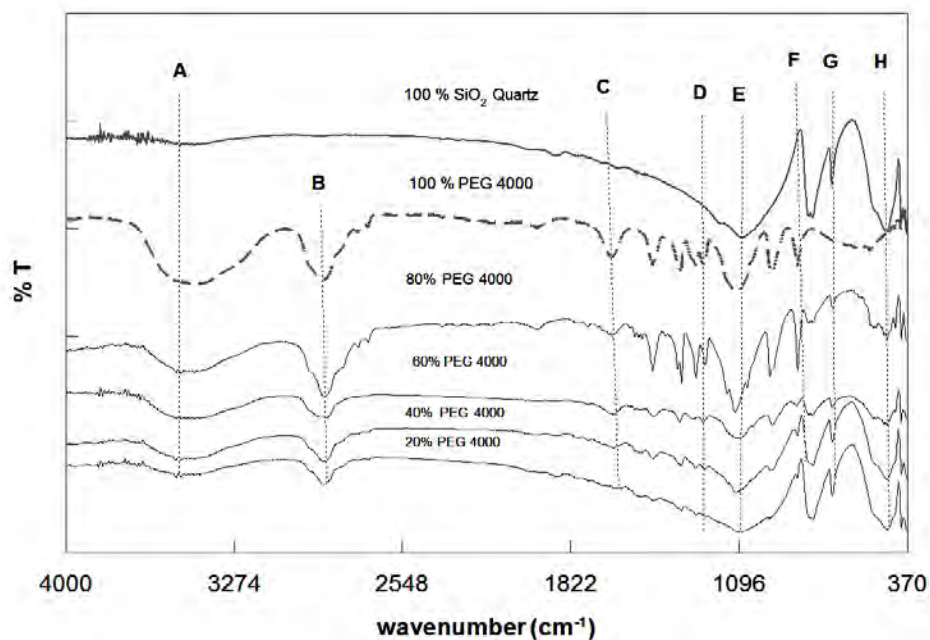
4.2.2. Analisis Spektroskopi FTIR Komposit PEG 4000/SiO₂

Spektroskopi FTIR digunakan untuk mengetahui dan mengkonfirmasi jenis ikatan gugus senyawa organik yang terbentuk pada komposit PEG4000/SiO₂. Karakterisasi spektroskopi FTIR dilakukan dengan menggunakan rentang panjang gelombang *mid-infrared*, yaitu pada rentang 4000-400 cm⁻¹ seperti yang ditampilkan pada Gambar 4.15. Kesesuaian panjang gelombang spektrum inframerah yang diberikan referensi dengan panjang gelombang spektrum inframerah semua sampel komposit PEG 4000/SiO₂ ditampilkan dengan lebih lengkap pada Tabel 4.2.

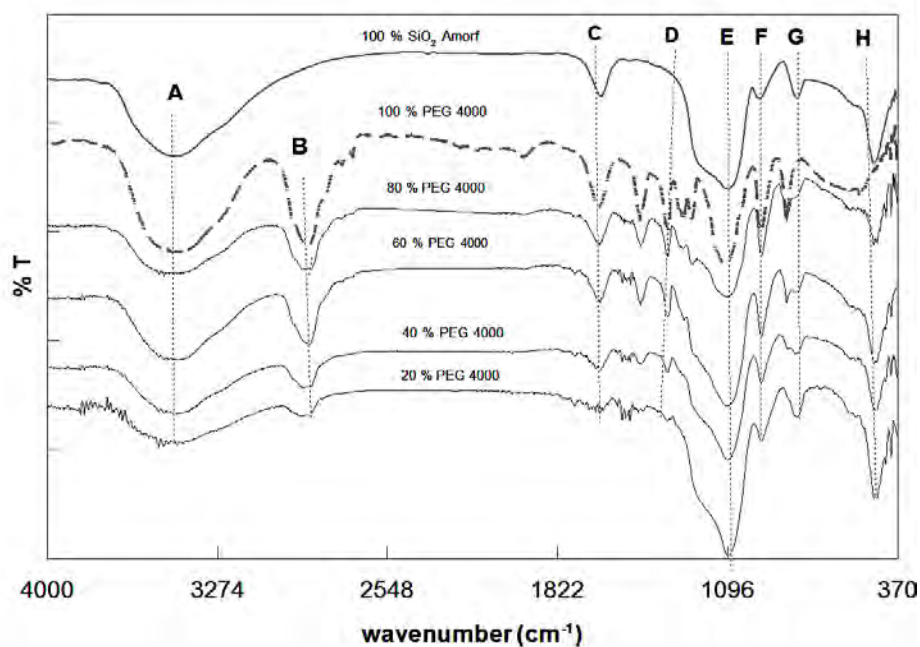
Beberapa puncak spektrum inframerah yang terdeteksi mengalami pergeseran panjang gelombang sebesar puluhan hingga ratusan cm⁻¹. Penyebab pergeseran ini adalah terjadinya deformasi tertentu dalam molekul, pergerakan sekelompok atom-atom, adanya vibrasi *bending* atau *stretching* pada ikatan tertentu, atau adanya efek elektronik pada molekul tersebut (Stuart, 2004) terhadap keadaan idealnya.

Dapat disimpulkan bahwa masing-masing sampel memiliki ikatan-ikatan gugus senyawa organik PEG 4000 dan ikatan Si-O-Si yang terpisah dari PEG

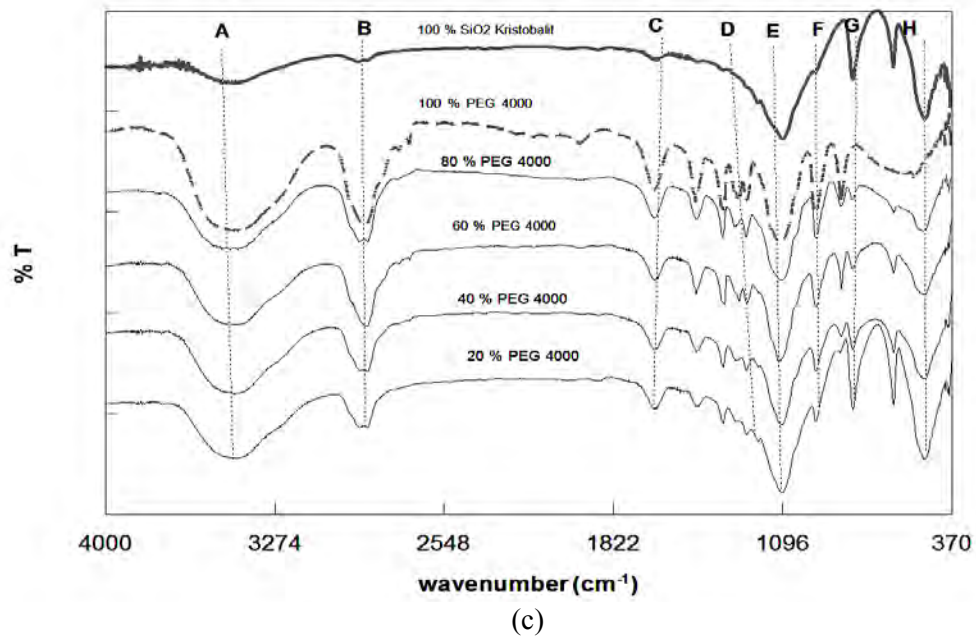
4000. Tidak terdapat puncak baru sebagai akibat reaksi antara PEG 4000 dan SiO_2 di dalam komposit. Sehingga hasil tersebut dapat mengkonfirmasi terbentuknya komposit PEG 4000/ SiO_2 .



(a)



(b)



Gambar 4.15 FTIR dari komposit (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SA, (c) PEG 4000/SC.

Tabel 4.2 Perbandingan Panjang Gelombang Puncak Spektrum FTIR antara Referensi dengan Komposit PEG 4000 Berpenguat SQ, SA, dan SC.

Jenis Ikatan		Wavenumber (cm ⁻¹)			
		Referensi*	SQ	SA	SC
A	Si-OH <i>asym. stretching</i>	3700-3200	3443	3435	3448
B	O-H <i>stretching</i>	3750-2500	2880	2908	2908
C	C=C <i>stretching</i>	1650-1900	1643	1632	1639
D	C-OC <i>stretching</i>	1500-800	1344	1352	1462
E	Si-O-Si <i>asym. stretching</i>	1130-1000	1082	1099	1094
F	C-OC <i>stretching</i>	1500-800	951	951	955
G	Si-O-Si <i>asym. stretching</i>	1130-1000	778	798	795
H	Si-O-Si <i>bending</i>	500-200	459	471	469

*(Stuart, 2004; Li dkk., 2013).

4.3. Pengujian DMA pada Komposit PEG 4000/SiO₂

4.3.1. Preparasi Sampel DMA

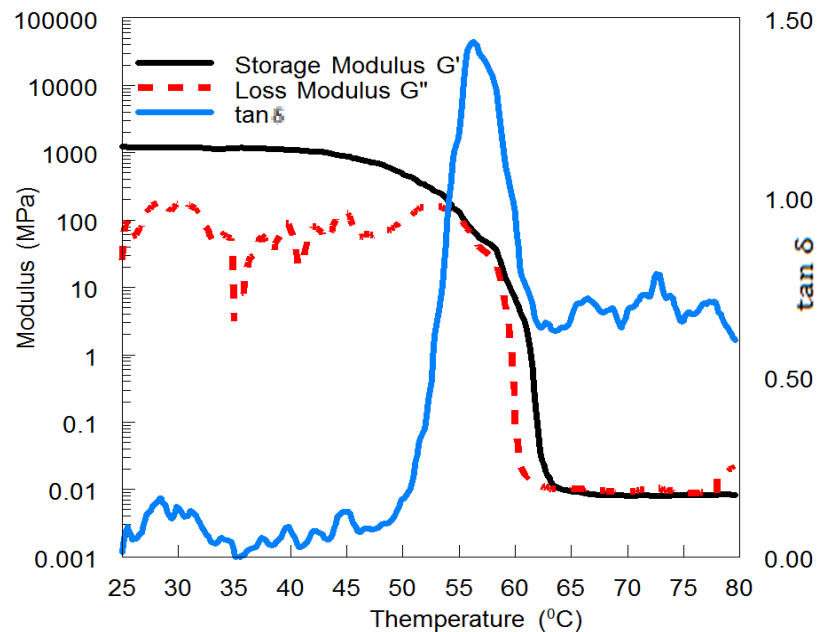
Sebelum melakukan pengujian sifat mekanik pada komposit PEG 4000/SiO₂ dengan menggunakan DMA, sampel yang digunakan harus dipreparasi sedemikian rupa, seperti dijelaskan pada bab sebelumnya, sehingga memenuhi

persyaratan dalam pengujian DMA, dalam hal ini dengan mode pengukuran *shear*. Sampel yang digunakan dalam pengujian DMA ditunjukkan pada Gambar 4.16, dengan geometri sampel ($5 \times 5 \times 1$) mm³.



Gambar 4.16 Sampel DMA dari komposit PEG 4000/SiO₂ untuk mode *shear*, dengan variasi penguat berupa serbuk SQ, SA, dan SC.

4.3.2. Hasil Keluaran DMA



Gambar 4.17 Tipikal hasil luaran DMA berupa *storage modulus* (G'), *loss modulus* (G''), dan $\tan \delta$ (*damping factor*) – diwakili oleh komposit dengan penambahan 60%wt silika kuarsa.

Gambar 4.17 menunjukkan luaran tipikal dari DMA mode *shear*, yaitu berupa modulus penyimpanan (*storage modulus*, G'), faktor hilang (*loss modulus*, G''), dan $\tan \delta$ (*damping factor*). Hasil pengujian DMA terhadap temperatur memiliki makna fisis yang lebih kompleks, di antaranya mampu menjelaskan gerakan molekul dari rantai polimer, *melting point* dan *transition glass temperature* (T_g) dari material yang diuji.

Modulus penyimpanan (G') menunjukkan kemampuan material untuk menyimpan energi (Stark dkk., 2015), dalam keadaan pengukuran *shear* (disingkat “dalam *shear*”), pada Gambar 4.18 ditunjukkan dengan grafik berwarna hitam. G' dari komposit PEG 4000/SQ menurun seiring kenaikan temperatur, sebab energi (*shear*) yang tersimpan akibat gerakan molekul dari rantai polimer yang semakin bebas berkurang (Kinloch dkk., 2005). Ketika temperatur mencapai titik kritis, ikatan karbon pada gugus polimer akan melemah. Pada Gambar 4.17 penurunan yang signifikan terjadi pada temperatur sekitar 60°C. Fenomena ini mengindikasikan adanya *α transition* atau sering disebut dengan T_g (*transition*

glass temperature, temperatur transisi gelas), dikarenakan PEG 4000 yang meleleh. Perlu dicatat bahwa secara umum, modulus geser (G , *shear*) berbanding lurus dengan modulus elastisitas (E) jika material bersifat isotropik (Chuancheng dkk., 2012).

Modulus penyimpanan (E') ekuivalen dengan modulus elastisitas yang menggambarkan kekakuan (*stiffness*) material. Besaran ini juga merupakan ukuran jumlah energi yang dikembalikan ke sistem secara elastis setelah pemberian regangan. Faktor hilang (E'') adalah indikator energi yang terserap matriks yang tidak dikembalikan secara elastik. Sebagai gantinya, energi ini digunakan untuk meningkatkan vibrasi molekuler atau memindah/menggeser (*translate*) posisi rantai polimer.

Modulus geser penyimpanan (*storage shear modulus*, G') disebut juga modulus rigiditas (*rigidity modulus*). Besaran ini menggambarkan sifat elastik dari sebuah padatan terhadap gaya transversal seperti misalnya terjadinya puntiran (*torsion*) atau (*twisting*) pada sebuah logam yang ditarik ujung-ujungnya. Oleh sebab itu, besaran ini merupakan ukuran kemampuan sebuah material untuk menahan deformasi transversal. Nalainya merupakan indeks sifat elastik hanya untuk nilai deformasi yang sangat kecil sedemikian rupa sehingga material dapat kembali ke keadaan asalnya. Gaya geser yang terlalu besar akan mengakibatkan “flow” dan deformasi permanen atau fraktur/kerusakan (*fracture*).

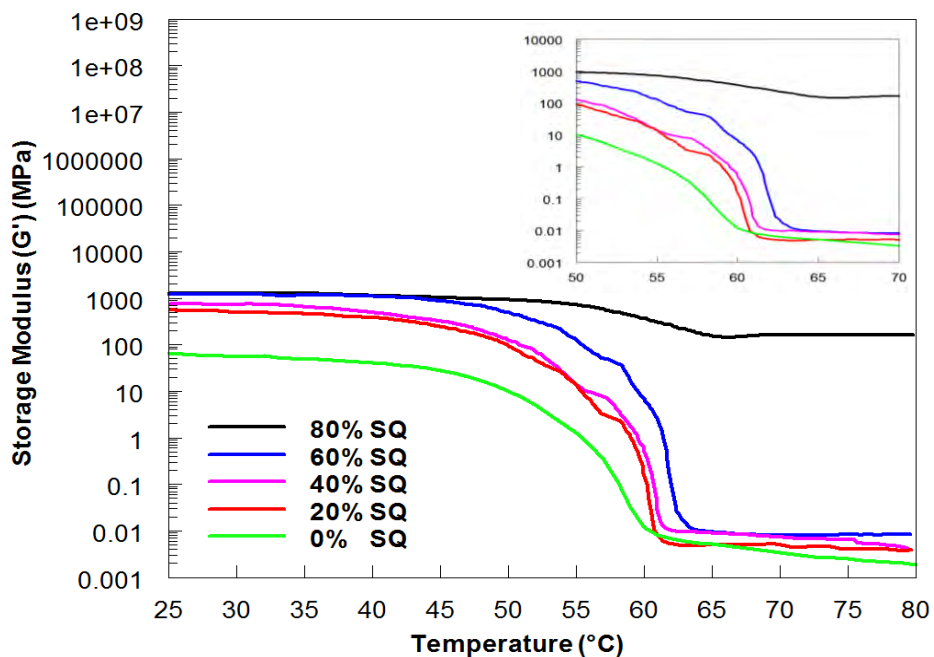
$\Delta E'$ antara daerah plateau sebelum dan sesudah transisi gelas berkaitan dengan densitas *crosslink* polimer. Nilai ΔE kecil menggambarkan densitas *crosslink* yang lebih besar. Interpretasi penurunan densitas *crosslink* juga berlaku pada nilai modulus geser ($\Delta G'$). Pada sub bab berikutnya akan dibahas secara lebih rinci tentang penurunan densitas *crosslink* komposit PEG 4000/SiO₂ dari nilai modulus penyimpanan ($\Delta G'$).

Faktor hilang (G'') menunjukkan adanya energi yang terlepas seiring dengan kenaikan temperatur (Stark dkk., 2015) dalam *shear*, dan ditunjukkan dengan grafik merah pada Gambar 4.17. Faktor hilang lebih jauh menjelaskan tentang *interface* yang ada pada komposit (Etaati dkk., 2014). Semakin baik *interface* antara matriks dan pengisi, semakin rendah nilai faktor hilang (*loss*

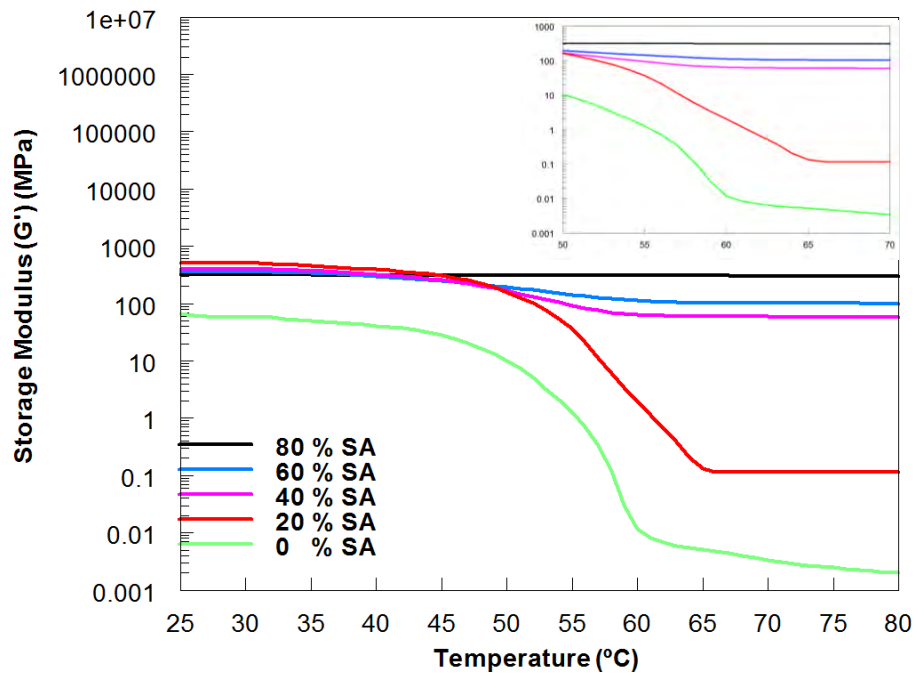
modulus). Selanjutnya, $\tan \delta$ (*damping*) merupakan perbandingan antara G'' dan G' dan menggambarkan seberapa efisien sebuah material kehilangan energi selama terjadinya *molecular rearrangement* dan friksi internal (Xie dkk., 2008).

4.3.3. Modulus Penyimpanan (G') pada Komposit PEG 4000/SiO₂

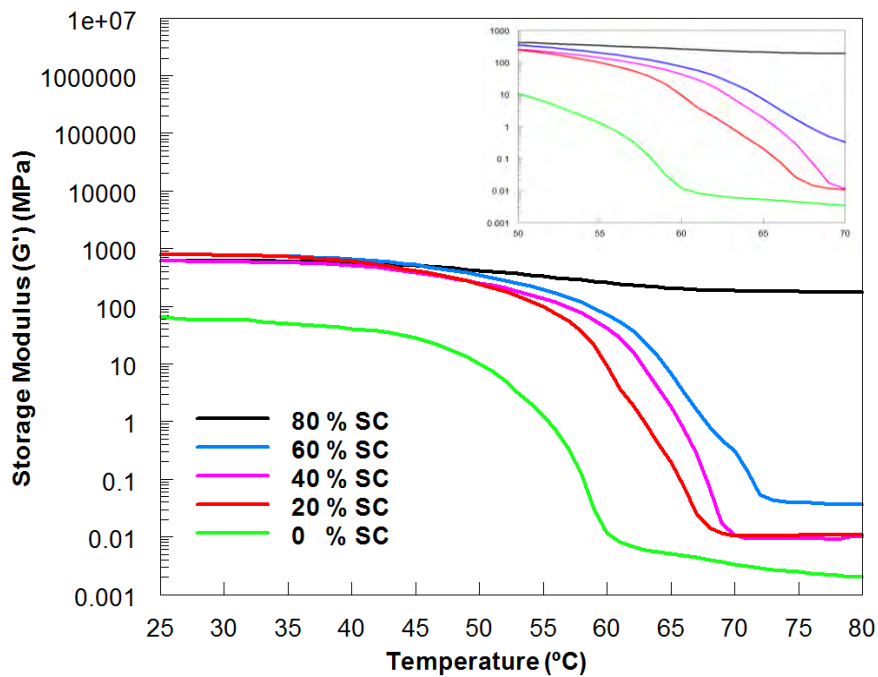
Gambar 4.18 menunjukkan nilai modulus penyimpanan (G') pada komposit PEG 4000 dengan pengisi (a) SQ, (b) SA, dan (c) SC. Dalam satu komposisi, komposit dengan penguat SQ memiliki nilai absolut tertinggi kemudian diikuti oleh SC dan SA. Secara umum, nilai absolut G' semakin meningkat seiring dengan penambahan penguat dan semua komposit menunjukkan pola penurunan nilai G' seiring dengan kenaikan temperatur.



(a)



(b)



(c)

Gambar 4.18 Modulus penyimpanan dari (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SA, (c) PEG4000/SC.

Menurut Menard (2008), plot modulus penyimpanan terhadap temperatur dapat menggambarkan gerakan lokal molekuler yang dilanjutkan dengan kehilangan ketangguhan (*toughness*) (ditandai adanya T_γ dan T_β) sebelum

temperatur transisi gelas (T_g atau T_α) yang merupakan temperatur dimulainya terjadinya penurunan densitas *crosslink*. Penurunan densitas *crosslink* dapat diketahui dari turun drastisnya nilai modulus penyimpanan yang dilanjutkan dengan fenomena *rubbery plateau*. Pada polimer amorf, *plateau* ini diikuti dengan penurunan lanjutan pada nilai modulus penyimpanan. Berdasarkan teori ini, beberapa hal umum mengenai komposit PEG/SiO₂ dapat disimpulkan:

- T_γ dan T_β tidak teramati secara jelas untuk semua sampel, karena tidak terlihat penurunan modulus penyimpanan pada temperatur di bawah 50°C sebagai indikator utama terjadinya kehilangan densitas *crosslink*.
- Semua sampel menunjukkan adanya transisi gelas dengan nilai T_g yang akan dilaporkan pada bagian berikutnya.
- Semua komposit menunjukkan adanya penurunan densitas *crosslink* diperlihatkan oleh adanya $\Delta G'$ setelah T_g dilanjutkan dengan *rubbery plateau* hingga temperatur 50°C. Hal sedikit berbeda ditunjukkan oleh sampel PEG murni, yaitu *rubbery plateau* tidak sedatar pada sampel komposit dan dilanjutkan dengan penurunan modulus lebih lanjut yang disebabkan oleh keamorfan yang menonjol pada sampel PEG ini.
- Semua komposit memperlihatkan penurunan modulus yang seiring dengan konsentrasi polimer. Semakin sedikit polimer (semakin banyak silika), semakin sedikit penurunan modulus. Untuk konsentrasi silika 80%, pada komposit dengan silika kristal (SQ dan SC), penurunan modulus tersebut masih cukup tampak, namun pada komposit silika amorf, penurunan tersebut hampir tidak tampak (modulus tidak dipengaruhi temperatur) dan nilai absolut modulus lebih rendah.

Bagian berikut ini menjelaskan hasil-hasil untuk masing-masing kelompok komposit.

Tabel 4.3 Nilai Absolut Modulus Penyimpanan dari Komposit PEG 4000/SiO₂ pada Temperatur Kamar.

Komposisi Silika (wt%)	Absolut Modulus Penyimpanan (MPa)		
	SQ	SA	SC
80	1261 ± 18	318 ± 19	616 ± 19
60	1236 ± 16	355 ± 15	788 ± 16
40	756 ± 19	400 ± 19	606 ± 18
20	556 ± 16	511 ± 17	796 ± 16
0	93 ± 17	93 ± 17	93 ± 17

Dalam satu komposisi, komposit dengan penguat SQ memiliki nilai absolut tertinggi kemudian diikuti oleh SC dan SA, sebab silika kuarsa diduga memiliki modulus geser tertinggi, yaitu 41,1 GPa (Pabst dan Gregorova, 2013), sedangkan modulus SiO₂ kristobalit (39,1 GPa), dan SiO₂ gelas (30,9 GPa) (Pabst dkk., 2014). Secara umum, nilai absolut G' komposit semakin meningkat seiring dengan penambahan penguat menandakan semakin besarnya energi yang diserap silika, tampak jelas dari Tabel 4.3.

Nilai G' memiliki kecenderungan semakin menurun, mengindikasikan berkurangnya energi yang tersimpan, seiring dengan peningkatan temperatur akibat gerakan molekul dari rantai polimer yang semakin bebas. Pada temperatur yang lebih tinggi G' kemudian turun secara signifikan akibat terputusnya rantai PEG yang menandakan bahwa PEG telah meleleh (Shitanoki dkk., 2014). Dengan kata lain, densitas *crosslink* turun secara drastis (Menard, 2008).

Penambahan silika amorf yang tak berbentuk akan cenderung menurunkan kekuatan mekanik (modulus) komposit PEG 4000/SA. Secara teori, permukaan nanosilika yang sangat luas berinteraksi dengan rantai polimer sehingga mengurangi kebebasan gerak dari rantai polimer PEG 4000. Interaksi inilah yang akan meningkatkan kekuatan mekanik komposit jauh di atas kekuatan polimer, hingga batas tertentu (Kinloch dan Taylor, 2006). Dalam prakteknya pada penambahan 80%wt amorf, sampel cenderung *brittle* (getas). Kurangnya PEG yang mengikat juga dapat menurunkan nilai modulus geser komposit, karena mayoritas ikatan silika dengan PEG telah putus. Dari hasil yang ditunjukkan pada

Gambar 4.18(b), nilai tertinggi G' dari komposit PEG 4000/SA dicapai dengan penambahan 20%wt SA.

Nilai modulus penyimpanan komposit PEG/SAurut sesuai dengan penambahan penguat tampak jelas pada temperatur di atas 50°C (*caption* Gambar 4.19(a), (b), dan (c)), sebab PEG sudah melunak dan G' yang terukur oleh DMA berasal dari silika.

Penurunan G' dari daerah *glassy* sampai dengan daerah *ruberry* dapat diartikan sebagai keefektifan dari pengisi di dalam komposit yang dapat direpresentasikan dengan persamaan matematis berikut (Pothen dkk., 2003):

$$C = \frac{(G'_g/G'_r)_{comp}}{(G'_g/G'_r)_{mat}} \dots\dots\dots (4.1)$$

dimana G'_g dan G'_r merupakan nilai modulus penyimpanan pada daerah *glassy* dan *ruberry*.

Tabel 4.4 menunjukkan nilai konstanta C dari komposit PEG 4000/SiO₂ yang mengindikasikan adanya keefektifan dari pengisi dalam menyimpan energi pada komposit akibat penurunan densitas *crosslink* (Menard, 2008). Semakin besar nilai C semakin tidak efektif pengisi dalam berikatan dengan matriks (Pothen dkk., 2003).

Komposit dengan pengisi SQ, SA, dan SC memiliki nilai C terendah pada komposisi 80% pengisi, dan akan naik seiring dengan semakin sedikitnya jumlah pengisi. Hal ini mengindikasikan bahwa pada komposit 80% pengisi memiliki keefektifan yang tertinggi pada pengisi dalam berikatan dengan matriks. Pada komposisi penguat yang sama, nilai C pada PEG 4000/SA paling rendah dan diikuti dengan SC, SQ. Sehingga dapat diartikan bahwa penurunan densitas *crosslink* dari komposit PEG 4000/SA paling rendah dibanding komposit dengan penguat SQ dan SC. Fenomena ini disebabkan ukuran SA sangat kecil (nanometrik), porositas yang terbentuk pun sangat kecil, sehingga PEG sisa (yang tidak berikatan dengan SiO₂) yang mengisi porositas juga sedikit. Selain itu pada komposit dengan pengisi SA terjadi ikatan yang lebih banyak antara silika dengan PEG (keefektifan silika dan PEG dalam berikatan lebih tinggi), dan semakin sedikit PEG sisa yang tidak berikatan sehingga menyebabkan penurunan densitas *crosslink* PEG 4000/SA lebih rendah.

$$G'_r = \frac{3\phi dRT}{Mc} = 3\phi\alpha RT \dots\dots\dots (4.2)$$

Persamaan (4.2) diatas menunjukkan kaitan antara nilai modulus penyimpanan di daerah *ruberry* dengan densitas *crosslink* (α), yang mana $\alpha = d/M_c$ (Unsworth dan Li, 1992). Semakin besar densitas *crosslink* (C kecil), maka nilai modulus geser komposit di daerah *ruberry* akan semakin besar.

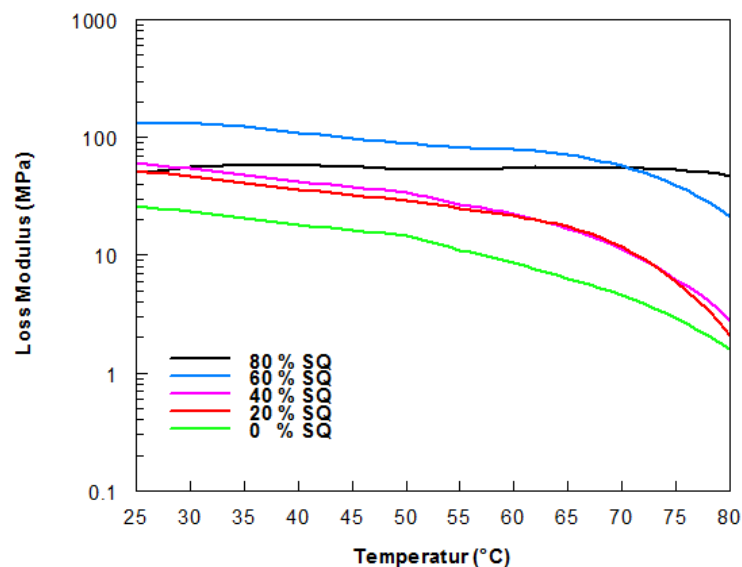
Tabel 4.4 Nilai konstanta (C) Pengisi dalam Menyimpan Energi dari Komposit PEG 4000 dengan Pengisi SQ, SA, dan SC.

Komposisi Silika (%wt)	(C)		
	SQ	SA	SC
80	0,0012	0,0002	0,0005
60	0,4571	0,0003	0,1912
40	1,1405	0,0009	0,2402
20	1,3382	0,6618	0,5015

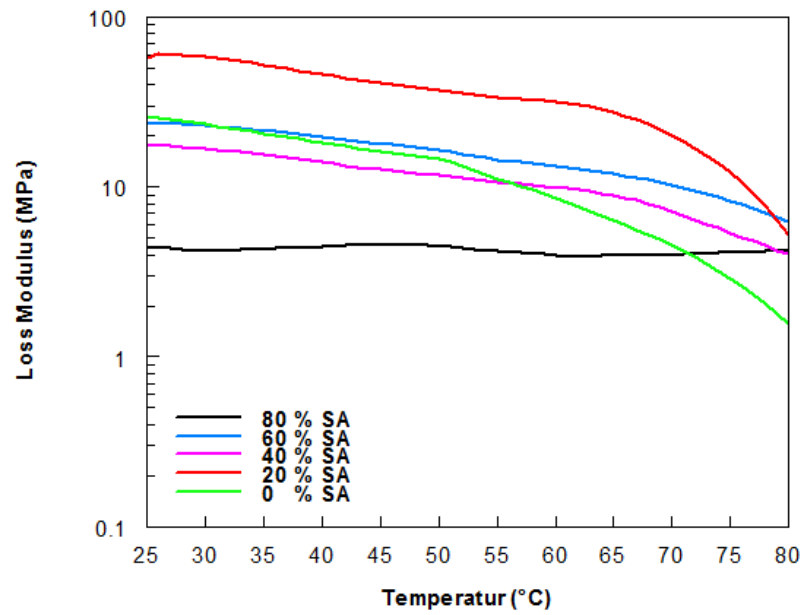
4.3.4 Faktor Hilang (G'') pada Komposit PEG 4000/SiO₂

Gambar 4.19 menunjukkan nilai faktor hilang (*loss modulus, G''*) dari komposit (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SA, (c) PEG 4000/SC. Pada semua komposit, nilai fakor hilang akan semakin menurun seiring dengan peningkatan temperatur.

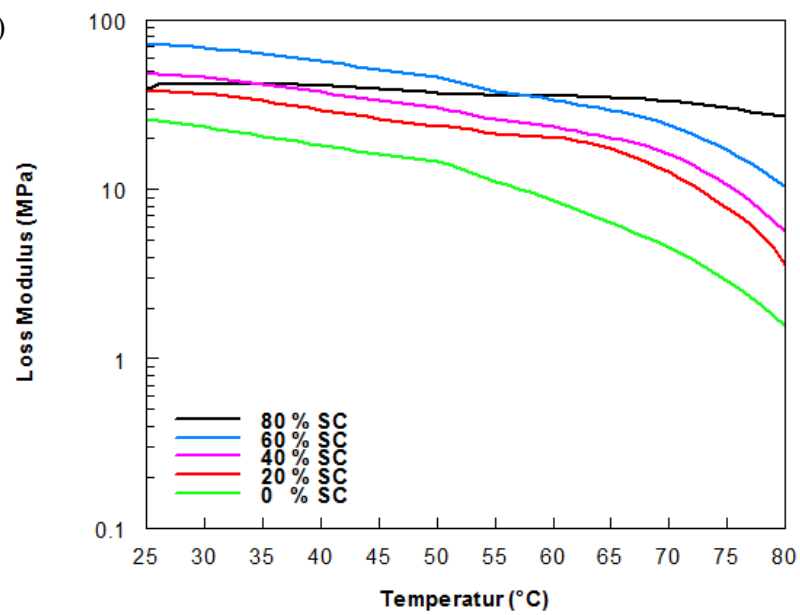
(a)



(b)



(c)



Gambar 4.19 Faktor hilang (G'') dari komposit (a) PEG 4000/SQ, (b) PEG 4000/SA, (c) PEG 4000/SC.

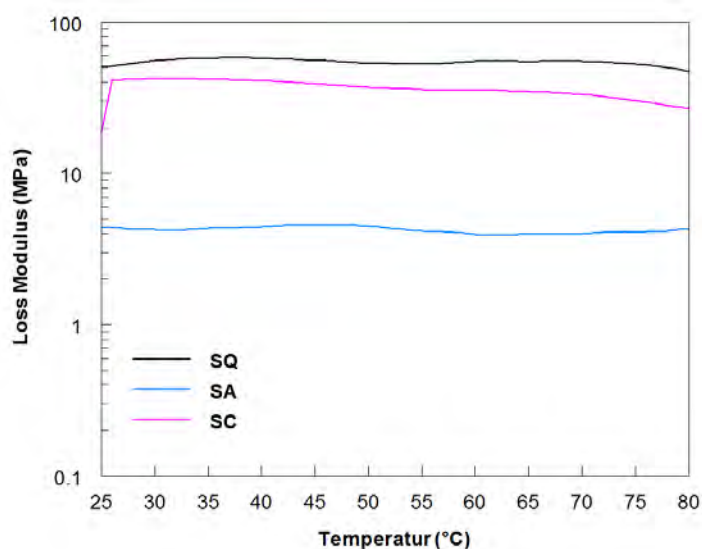
Terdapat dua fenomena utama faktor hilang yang terlihat yang dipisahkan oleh nilai T_g , yaitu di bawah dan di atas T_g . Di bawah T_g , pengaruh konsentrasi

pengisi terhadap G'' tidak berurutan. Tetapi, faktor hilang memiliki kecenderungan untuk semakin meningkat seiring dengan penambahan pengisi saat temperatur di atas T_g . Fenomena ini menandakan semakin besarnya energi yang dilepas komposit akibat gesekan antara molekul pengisi dan molekul polimer yang tersebar homogen (Etaati dkk., 2014). Namun peristiwa yang berbeda ditunjukkan oleh komposit PEG/SA, yaitu faktor hilang cenderung berkurang dengan penambahan pengisi. Perbedaan ini disebabkan struktur silika amorf yang berukuran sangat kecil (nanometrik) dan tak berbentuk sehingga pola penurunan G'' memiliki urutan yang berbeda jika dibandingkan dengan komposit PEG/SQ dan PEG/SC.

Selain kedua fenomena di atas, dijumpai fenomena serupa pada semua sampel komposit dengan konsentrasi silika 80%wt, yaitu nilai faktor hilang yang relatif tetap terhadap temperatur. Artinya, jumlah energi yang hilang selama pemanasan selalu tetap pada semua komposit tersebut karena hanya mengandung 20%wt polimer yang tidak kehilangan *crosslink* secara signifikan seperti yang ditunjukkan hasil pengukuran modulus simpan.

Faktor hilang (G'') juga dapat menjelaskan kualitas *interface* antara matriks dan pengisi. Apabila nilai faktor hilang semakin tinggi (meningkat), kualitas *interface* antara matriks dan pengisi dikatakan buruk (Etaati dkk., 2014). Sebagai langkah awal, dilakukan perbandingan nilai faktor hilang dari komposit dengan komposisi 80%wt SiO_2 .

Gambar 4.20 menunjukkan bahwa nilai faktor hilang tertinggi pada komposit PEG 4000/ SiO_2 dengan 80%wt SiO_2 dicapai oleh SQ, dan dilanjutkan SC, kemudian SA. Jadi, energi terlepas tertinggi dialami oleh SQ, sedangkan *interface* terbaik dimiliki oleh SA, karena memiliki faktor hilang terendah. Hal ini disebabkan oleh ukuran SA yang sangat kecil (nanometrik) sehingga SA memiliki luas permukaan yang paling besar dibandingkan dengan SQ dan SC untuk berinteraksi dengan rantai polimer (Manjunatha dkk., 2010) dalam membentuk ikatan.



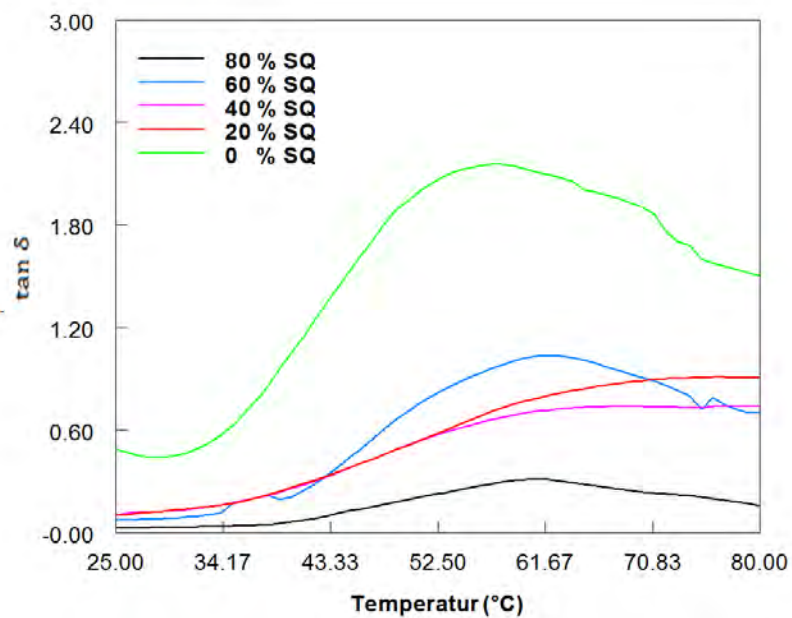
Gambar 4.20 Faktor hilang (G'') dari komposit PEG 4000/SiO₂ dengan 80%wt penguat SQ, SA, dan SC.

G'' juga menggambarkan viskositas (kekentalan) atau sifat kelikuidan material uji. Pada semua temperatur, energi deformasi “*shear*” hilang terbanyak terjadi pada komposit PEG/SQ dan paling sedikit pada komposit PEG/SA. Energi yang hilang berupa disipasi panas, terutama akibat gaya gesek. Artinya, pada suatu temperatur tertentu, panas yang didisipasi oleh PEG/SQ lebih banyak daripada PEG/SA. Jika karakteristik PEG pada semua komposit sama, jumlah pengisi sama, maka yang membuat nilai disipasi panas lepas berbeda adalah karakteristik SQ dan SA. Pada komposisi tertentu, kristalit SQ yang relatif besar menghasilkan densitas *crosslink* PEG (sisa) yang besar dibandingkan pada komposit PEG/SA yang memiliki ukuran kristalit SA yang kecil (akibat permukaan yang luas). Ketika gaya “*shear*” luar yang sama diaplikasikan pada temperatur tertentu pada kedua jenis komposit, maka energi yang dilepas oleh komposit PEG/SQ lebih besar daripada oleh PEG/SA.

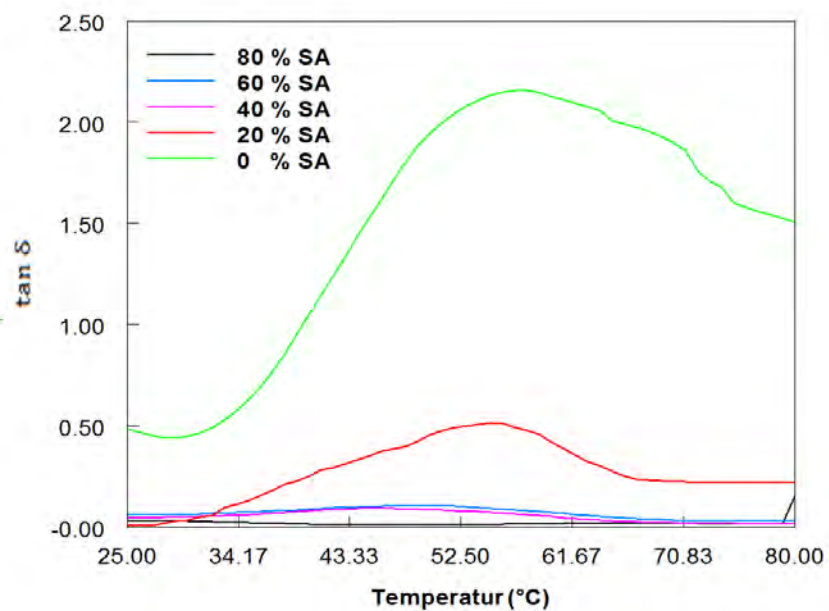
4.3.5 $\tan \delta$ pada Komposit PEG 4000/SiO₂

Gambar 4.21 menampilkan nilai $\tan \delta$ dari komposit PEG 4000 dengan penguat SQ, SA, dan SC. Nilai $\tan \delta$ tertinggi dicapai oleh komposit dengan 0%wt penguat, karena $\tan \delta$ secara fisis merupakan faktor redaman yang dialami oleh material komposit akibat ketidak teraturan gerakan rantai pada gugus fungsi

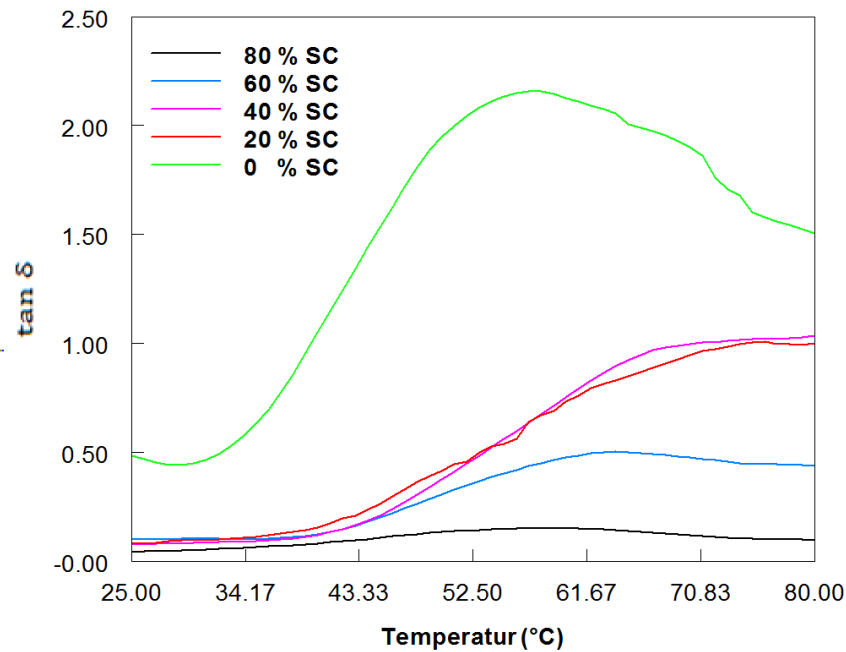
polimer, yang mana sering disebut dengan peristiwa pengenceran (*gelatinisasi/dilution*).



(a)



(b)



(c)

Gambar 4.21 $\tan \delta$ dari komposit PEG 4000 dengan penguat SQ (a), SA (b), dan SC (c).

Menurut Ramdani dkk. (2014), plot $\tan \delta$ terhadap temperatur dapat menggambarkan faktor redaman yang ditunjukkan dari ketinggian puncak $\tan \delta$. Faktor redaman sering dikaitkan dengan pengenceran (*dilution*) akibat kurangnya ketangguhan (*toughness*) di dalam material uji. Selain itu, lebar puncak dari $\tan \delta$ menunjukkan proses relaksasi dari material ketika diberikan beban dinamis dan perlakuan suhu. $\tan \delta$ dapat pula menunjukkan adanya fenomena T_g pada material komposit yang ditunjukkan dari puncak $\tan \delta$. Pada Gambar 4.21, semakin banyak SiO_2 yang ditambahkan, puncak $\tan \delta$ (T_g) akan bergeser ke kanan, sebab penambahan SiO_2 menghambat pergerakan bebas dari molekul dan rantai polimer. Namun dalam penelitian ini penentuan T_g dilakukan dari nilai modulus penyimpanan (G'), karena puncak $\tan \delta$ tidak nampak jelas. Beberapa hal umum dapat disimpulkan:

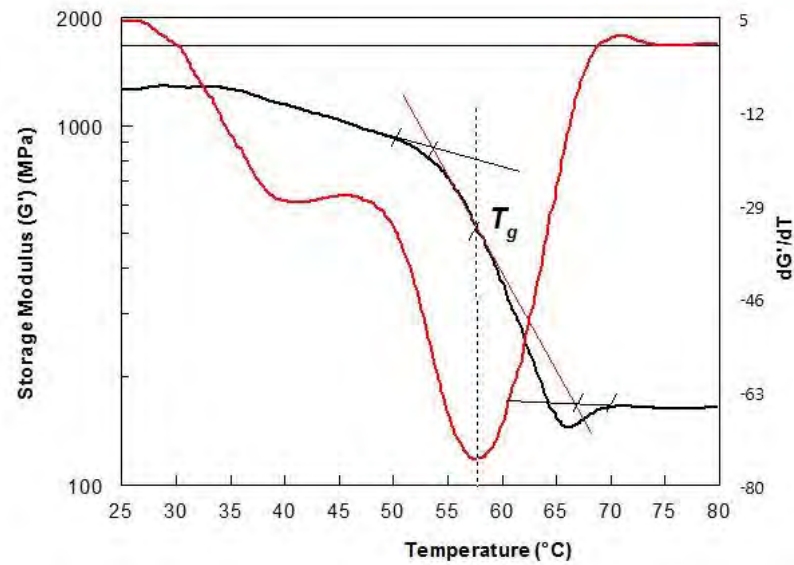
- Semua sampel menunjukkan bahwa nilai faktor redaman tertinggi terjadi pada komposisi 0%wt silika sebagai pengisi, dan akan menurun seiring dengan penambahan pengisi.

- Puncak $\tan \delta$ pada komposit tanpa pengisi memiliki lebar paling sempit dibanding komposisi yang lain.
- Lebar puncak $\tan \delta$ pada komposit dengan pengisi silika tidak tampak jelas, namun akan semakin melebar seiring dengan penambahan pengisi.

Pada komposit dengan 0%wt pengisi memiliki tingkat ketidakaturan gerakan rantai polimer yang lebih besar, sehingga respon polimer dalam redaman yang terjadi ditunjukkan dengan nilai $\tan \delta$ yang tinggi (Gambar 4.21). Sedangkan puncak $\tan \delta$ pada komposit tanpa pengisi (0%wt silika) memiliki lebar paling sempit dibanding komposisi yang lain pada semua kelompok komposit, karena proses relaksasi terjadi paling cepat. Seiring dengan penambahan pengisi, proses relaksasi semakin lambat karena terhambat oleh interaksi antara matriks dan pengisi (Ramdani dkk., 2014).

4.3.6. Penentuan *Transition Glass Temperature* (T_g) Komposit PEG 4000/SiO₂ dengan DMA

Gambar 4.22 menunjukkan penentuan T_g yang dilakukan dengan menarik titik tengah dari gradien *storage modulus* terhadap temperatur. Penentuan T_g pada Gambar 4.22 mewakili nilai diferensial dari modulus penyimpanan komposit terhadap temperatur (dG'/dT) (Sims dan Gnaniah, 2009). Nilai T_g dari komposit 4000/SiO₂ dilaporkan pada Tabel 4.5.



Gambar 4.22 Penentuan T_g dari grafik *storage modulus* terhadap temperatur (Sims dan Gnaniah, 2009).

Tabel 4.5 menunjukkan T_g dari masing-masing komposit PEG 4000 dengan pengisi SQ, SA, dan SC. Semakin banyak silika yang ditambahkan akan menggeser T_g ke kanan menandakan bahwa keberadaan silika menaikkan temperatur transisi gelas ke *rubbery*, terlihat pada semua penguat. Nilai T_g yang semakin tinggi seiring dengan penambahan silika mengindikasikan adanya kerusakan mekanik akibat pergerakan rantai molekul semakin bebas yang terjadi pada rantai utama maupun gugus hidroksil dari PEG ketika diberikan beban dan perlakuan suhu, membuat material komposit menjadi lebih lembek (transisi dari daerah *glassy* ke *rubbery*). Namun, fenomena T_g tidak jelas terlihat pada komposisi 80%wt SA. Plot grafik sebagai nilai *storage modulus* terhadap temperatur relatif datar (konstan), dan baru terjadi pada temperatur 63°C.

Tabel 4.5 *Transition Glass Temperature (T_g)* dari Komposit PEG 4000/SiO₂ dengan Penguat SQ, SA, dan SC.

Komposisi Silika (wt %)	T_g (°C)		
	SQ	SA	SC
0	43	43	43
20	47	47	47
40	50	48	48
60	51	51	50
80	58	63	52

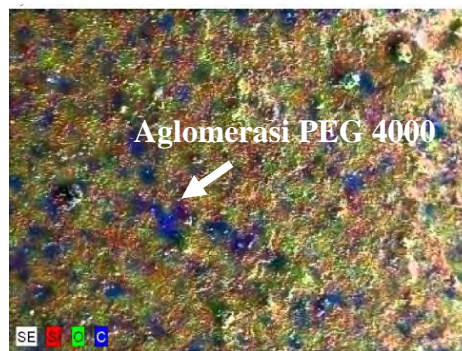
4.4. Kaitan Morfologi dan Sebaran terhadap Sifat Mekanik Komposit PEG 4000/SiO₂.

4.4.1. Morfologi Komposit PEG 4000/SQ

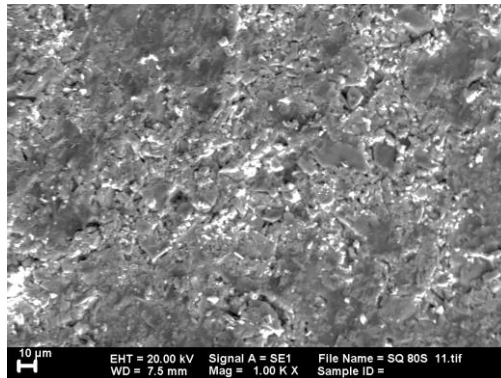
Morfologi dan sebaran dari komposit PEG 4000/SQ dapat dilihat dengan menggunakan SEM EDX. Data ini akan mendukung dan menunjukkan penyebab penurunan nilai *storage modulus*. Akan ditampilkan morfologi dari komposit PEG 4000/SQ dengan komposisi 80%wt dan 20%wt SQ. Komposisi ini dipilih karena dari hasil DMA menunjukkan fenomena yang sangat berbeda.

Gambar 4.23(a) menunjukkan sebaran dari PEG 4000 dan SQ cukup homogen, namun PEG cenderung mengelompok di beberapa bagian. Morfologi dari sampel komposit sebelum dilakukan uji DMA cenderung kasar yang mengindikasikan interaksi antara silika dan silika lebih banyak (Gambar 4.23(b)) (Jong, 2014) dan kerusakan dari sampel setelah pengujian DMA tampak pada Gambar 4.23(c). Tampak beberapa lubang di permukaan komposit yang mengindikasikan adanya *crack*, dikarenakan PEG 4000 yang semula berkelompok meleleh dan adanya beban dinamis pada saat pengujian DMA. Pada komposit ini, komposisi SQ yang lebih tinggi dibanding PEG sebagai matriksnya, transfer gaya yang terjadi tidak lagi dari matriks ke pengisi, namun langsung diterima oleh SQ

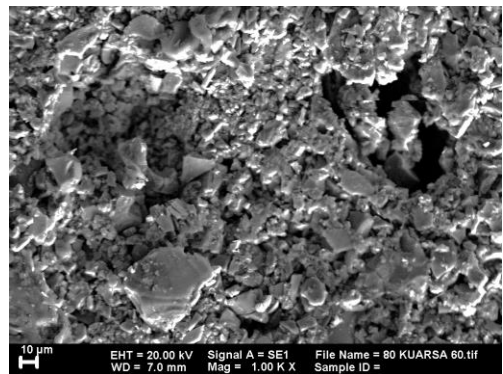
sebagai pengisi. Karena tekanan yang diberikan saat pengujian DMA lebih kecil dari *yield strength* SQ dan di atas *yield strength* PEG 4000, maka SQ mengalami deformasi elastis dan PEG mengalami deformasi plastis. Hal inilah yang menyebabkan kerusakan pada permukaan komposit hanya dialami oleh matriks saja. Apabila dikaitkan dengan energi yang dilepaskan (*faktor hilang*), komposit 80%wt SQ memiliki nilai faktor hilang tertinggi, yang mana berperan besar dalam mekanisme penghambatan persebaran *crack* (Manjunatha dkk., 2010).



(a)



(b)

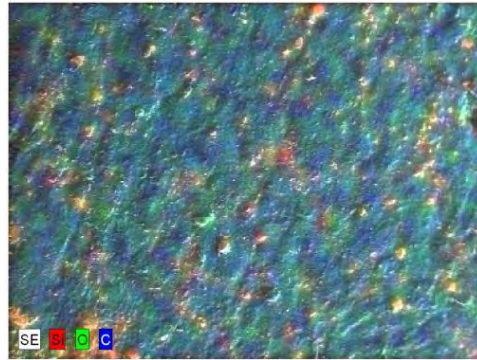


(c)

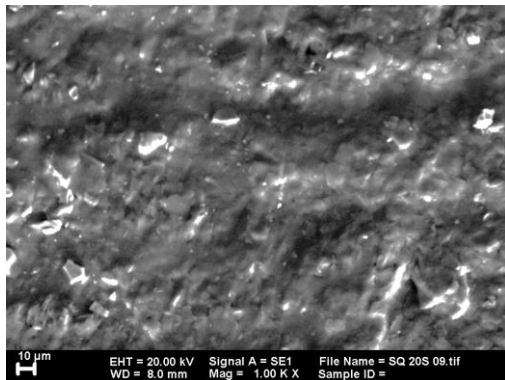
Gambar 4.8 Komposit 80%wt SQ perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.

Sebaran dari PEG 4000 dan SQ pada Gambar 4.24(a) cukup homogen, dengan didominasi PEG 4000. Gambar 4.24(b) menunjukkan morfologi dari sampel komposit sebelum pengujian dengan DMA. Tampak bahwa PEG 4000 menyelimuti permukaan sampel komposit. Namun setelah pengujian DMA (Gambar 4.24(c)), kerusakan dan *crack* menyebar di beberapa bagian. Semakin sedikit SQ yang ditambahkan, akan memperbesar mekanisme pertumbuhan *crack*.

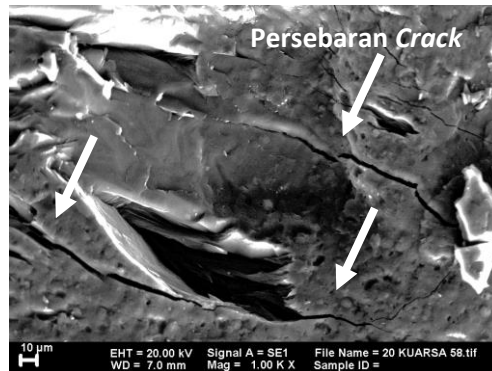
Rantai polimer PEG terputus akibat beban dinamis dan perlakuan temperatur, sehingga SQ mengalami *pull out* dan berakibat menurunnya nilai modulus komposit (Najam, 2011; Manjunatha dkk., 2010).



(a)



(b)

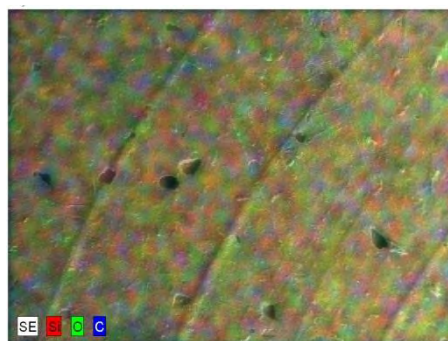


(c)

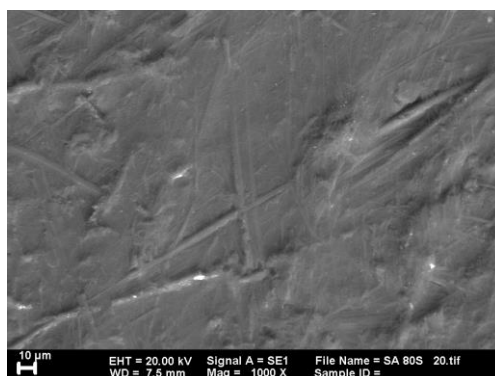
Gambar 4.24 Komposit 20%wt SQ perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.

4.4.2. Morfologi Komposit PEG 4000/SA

Gambar 4.25(a) menunjukkan sebaran dari PEG 4000 dan SA yang tergolong homogen. Morfologi dari sampel komposit sebelum dilakukan uji DMA ditunjukkan pada Gambar 4.25(b), permukaan sampel tampak halus karena pengisinya berupa SA yang berukuran nanometrik sehingga ukuran porositas yang terbentuk sangat kecil, dan kerusakan dari sampel setelah pengujian DMA tampak pada Gambar 4.25(c). *Crack* di permukaan sampel dikarenakan kurangnya PEG sebagai pengikat SA dan PEG (di permukaan dan porus SA) meleleh (mengalami deformasi plastis), sehingga menyebabkan nilai modulus dari hasil DMA menurun, namun nilai penurunan tersebut tidak terlalu besar dikarenakan SA berukuran nanometrik memiliki ketahanan terhadap suhu dan beban dinamis (Rosso dkk., 2006). *Crack* tidak menyebar ke seluruh permukaan komposit karena SA menghalangi perambatannya, sehingga meningkatkan kekuatan dan ketahanan patah (*fracture toughness* / ketangguhan) dari komposit (Najam, 2011).



(a)



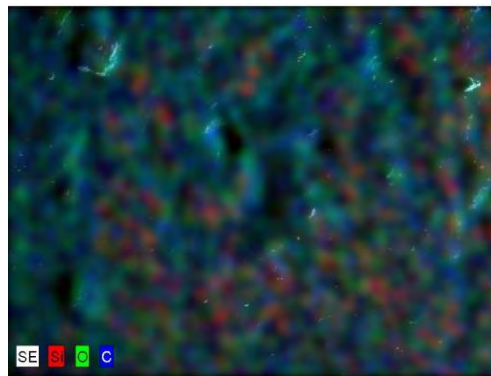
(b)



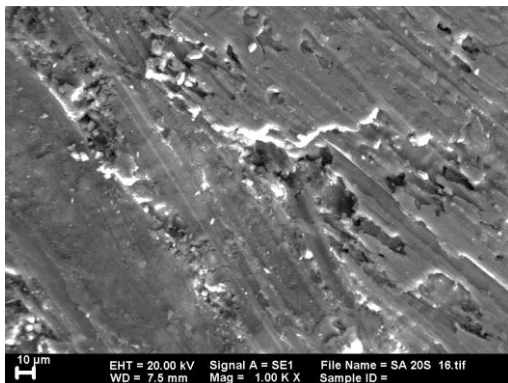
(c)

Gambar 4.25 Komposit 80%wt SA perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA

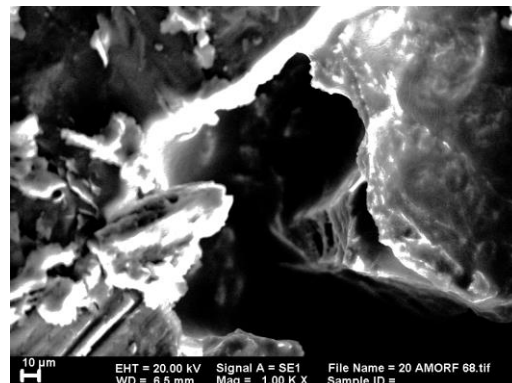
Pada Gambar 4.26(a), PEG 4000 tampak mendominasi komposit 20%wt SA. Gambar 4.26(b) menunjukkan morfologi permukaan sampel sebelum DMA. Setelah dilakukan pengujian DMA (Gambar 4.26(c)), PEG 4000 meleleh dan meninggalkan pori yang cukup akibat kurangnya SA yang dapat berfungsi sebagai penghalang perambatan *crack*. Akibatnya, nilai modulus dari komposit PEG 4000/SA menurun drastis.



(a)



(b)

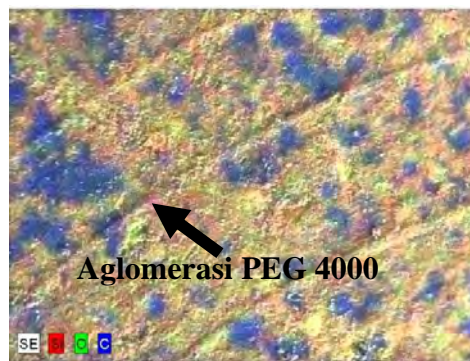


(c)

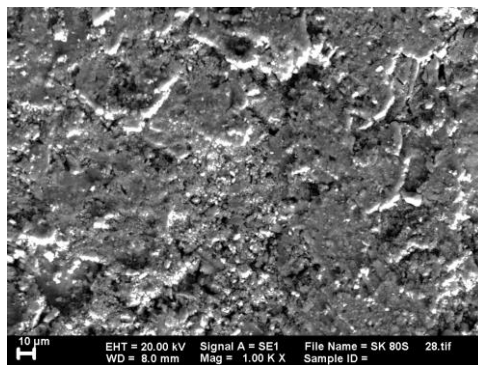
Gambar 4.26 Komposit 20%wt SA perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.

4.4.3. Morfologi Komposit PEG 4000/SC

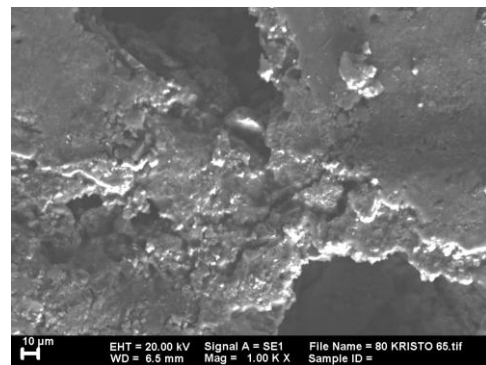
Gambar 4.27(a) menunjukkan sebaran dari PEG 4000 dan SC yang cukup homogen, namun PEG cenderung mengelompok di beberapa bagian. Morfologi dari sampel komposit sebelum dilakukan uji DMA ditunjukkan pada Gambar 4.27(b), permukaan sampel tampak kasar karena kurangnya PEG sebagai pengikat sehingga SC banyak tersebar di permukaan. Kerusakan dari sampel setelah pengujian DMA tampak pada Gambar 4.27(c). Kerusakan di permukaan sampel dikarenakan kurangnya PEG sebagai pengikat SC, serta PEG (sis) yang mengisi porus SC meleleh sehingga menyebabkan nilai modulus penyimpanan dari hasil DMA menurun.



(a)

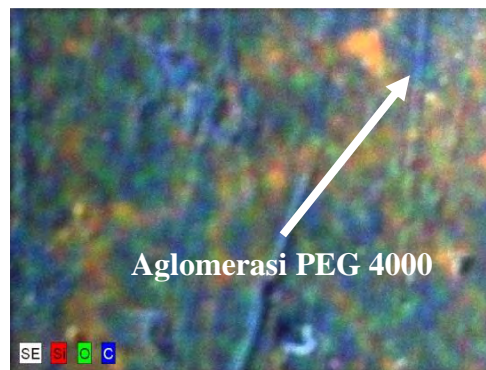


(b)

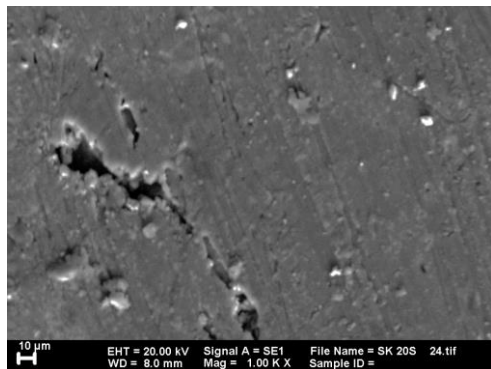


(c)

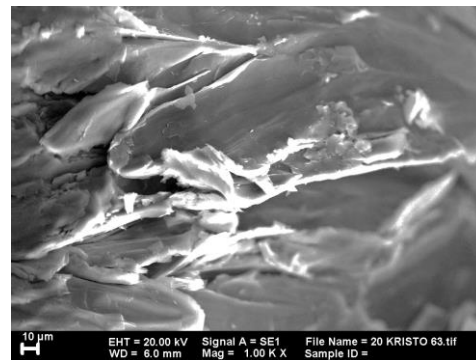
Gambar 4.27 Komposit 80%wt SC perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.



(a)



(b)



(c)

Gambar 4.28 Komposit 20%wt SC perbesaran 1000×, (a) sebaran, (b) morfologi sebelum DMA, (c) morfologi setelah DMA.

PEG 4000 tampak mengisi porus SC sehingga permukaan sampel relatif lebih halus dibandingkan permukaan komposit 80%wt SC. Gambar 4.28(b) menunjukkan morfologi permukaan sampel sebelum DMA. Setelah dilakukan pengujian DMA (Gambar 4.28(c)), PEG 4000 meleleh berakibat nilai modulus dari komposit PEG 4000/SC menurun drastis.

Beberapa peneliti sintesis material komposit cenderung menghindari fasa kristobalit. Misalnya, pada material $\text{MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ yang dikembangkan Bahadur dkk. sebagai komponen *fuel cell*, dikarenakan pada temperatur di bawah 200°C , struktur kristobalit mengalami transformasi dalam skala yang besar sehingga menyebabkan *microcracking* (Bahadur dkk., 2004). Terbentuknya *microcracking* ini merupakan cara untuk mengimbangi transformasi fasa yang terjadi dari *low* ke *high* *crystobalite* (Pabst dan Gregorova, 2013). Selain itu, nilai modulus dari silika kristobalit yang relatif rendah dibandingkan dengan silika

kuarsa yaitu 39,1 GPa (Pabst dan Gregorova, 2013). Sehingga meskipun SQ memiliki ukuran nanometrik dengan sedikit aglomerasi, nilai modulus dari komposit PEG 4000/SQ tidak terlalu tinggi.

4.5. Pembahasan

Bahan dasar didapatkan dari pasir Tanah Laut yang memiliki kandungan silika sebesar 89,49%. Dengan pencucian HCl dan metode kopresipitasi yang dilakukan, didapatkan bahwa kemurnian silika meningkat hingga 95,87% seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.1. Pasir silika yang telah dicuci dengan menggunakan HCl memiliki kandungan silika yang lebih tinggi, karena beberapa unsur pengotor pada pasir silika, seperti kalsium (Ca), terikat oleh HCl.

Salah satu aspek yang diteliti adalah jenis fasa pengisi, yaitu silika kuarsa, amorf, dan kristobalit. Pasir silika yang telah dicuci dengan HCl memiliki struktur kristal fasa kuarsa seperti pada Gambar 4.1. Fasa kuarsa merupakan fasa yang paling stabil pada senyawa silika. Namun demikian, setelah dilakukan sintesis dengan metode kopresipitasi didapatkan silika dengan struktur amorf, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.5. Pola difraksi serbuk silika amorf menunjukkan bahwa tidak terdapat puncak-puncak kristalin pada sampel tersebut, namun tampak puncak amorf di sekitar rentang sudut 17° - 27° . Terbentuknya serbuk silika amorf disebabkan oleh terputusnya ikatan kimia pada saat proses kopresipitasi. Pada saat silika dilarutkan dalam larutan NaOH 7 M, terjadi pembongkaran ikatan kimia SiO_2 sehingga terbentuk prekursor natrium silikat (Na_2SiO_3). Kemudian, proses kopresipitasi dilakukan dengan mentitrasi natrium silikat dengan HCl sehingga didapatkan silika dengan struktur amorf, dan untuk mendapatkan serbuk dengan ukuran kristal yang lebih besar, ukuran kristal serbuk silika amorf ditumbuhkan dengan melakukan kalsinasi pada temperatur 950°C dengan waktu penahanan 8 jam dengan bahan dasar pasir Bancar (Aristia, 2014). Berdasarkan penelitian tersebut dan hasil DSC TGA, dilakukan kalsinasi pada temperatur 950°C selama 8 jam dan didapatkan SC. Gambar 4.8, dengan pola difraksi menunjukkan gabungan antara struktur kristal *high cristobalite* (nomor PDF 76-1390).

Selanjutnya, sintesis komposit PEG 4000/SiO₂ dilakukan dengan metode *solid state reaction*. Dalam sintesis ini, digunakan tiga jenis serbuk silika sehingga didapatkan komposit PEG 4000/SQ, PEG 4000/SA, dan PEG 4000/SC. Analisis identifikasi fasa dilakukan pada sampel SQ, SA, dan SC yang dikarakterisasi menggunakan difraktometer sinar-X. Selain itu, identifikasi fasa menunjukkan adanya fasa *high cristobalite*. Pola difraksi sampel PEG 4000/SQ menunjukkan struktur PEG dan terbentuknya fasa kuarsa. Hasil ini menunjukkan bahwa PEG dan silika tidak bereaksi secara kimia, sehingga tidak ada fasa baru yang terdeteksi pada pola difraksi sinar-X. Hasil yang sama juga ditunjukkan dari pengujian FTIR pada komposit dengan pengisi SQ, SA dan SC, tidak terbentuk puncak baru yang mengindikasikan tidak adanya reaksi antara PEG 4000 dan (Li dkk., 2013).

Dalam mengkarakterisasi sifat mekanik komposit PEG 4000/SiO₂, dilakukan pengujian DMA dengan mode *shear*. Pengujian dilakukan terhadap fungsi temperatur (25-80)°C. Material komposit mengalami degradasi setelah dilakukan pengujian DMA yang dikonfirmasi menggunakan SEM, tampak pada Gambar (2.23-2.28)(c) (Siddiqui dkk., 2013). Hasil pengamatan dengan SEM sebelum dan sesudah pengujian DMA mendukung nilai penurunan modulus penyimpanan dari DMA (Gambar 4.18(a), (b), dan (c)), yang mana seiring dengan penambahan silika nilai G' akan semakin tinggi, namun nilai G' akan semakin menurun seiring dengan kenaikan temperatur. Secara umum, komposit mengalami degradasi fisik setelah pengujian DMA hingga 80°C. Nilai modulus penyimpanan tertinggi terlihat pada komposit PEG 4000/SQ, dan diikuti oleh komposit dengan pengisi SC, dan SA. Urutan nilai G' ini sesuai dengan besar modulus geser dari masing-masing penguat seperti yang telah diuji oleh Pabst dan Gregorova (2009). Komposit dengan komposisi silika yang tinggi akan lebih tahan terhadap temperatur dan beban dinamis, dan kerusakan yang terjadi tidak terlalu banyak jika dibandingkan dengan sedikit silika yang ditambahkan sebagai penguat. PEG merupakan material hidrofilik, yang mana kekuatan mekaniknya lemah karena mudah *debonding* yang berakibat *pull out* pada silika ketika terjadi deformasi akibat temperatur dan beban mekanik (Yuta dkk., 2012).

Meskipun nilai G' dari komposit PEG 4000/SA paling rendah, komposit ini memiliki kestabilan yang tinggi terhadap pemanasan (temperatur) dan beban dinamis yang diberikan (Rosso dkk., 2006; Kontou dan Niaounakis, 2006), ditunjukkan dari penurunan densitas *crosslink* yang kecil dibandingkan komposit dengan pengisi SQ dan SC (Tabel 4.4) (Menard, 2008). Hasil SEM pada Gambar 2.25(a) dan 2.26(a) menunjukkan sebaran yang cukup homogen dari SA dalam PEG 4000, jika dibandingkan pada komposit dengan pengisi SQ (Gambar 2.23(a)) dan SC (Gambar 2.27(a) dan 2.28(a)) yang terdapat banyak aglomerasi. Sehingga sebaran ini mampu mengkonfirmasi penurunan densitas *crosslink* dari komposit PEG 4000/SiO₂.

Grafik faktor hilang (G'') dapat dilihat pada Gambar 4.18. Faktor hilang memiliki kecenderungan semakin meningkat seiring dengan penambahan pengisi (SiO₂), utamanya SQ dan SC, yang menandakan semakin besarnya energi yang dilepaskan sebagai respon dari gesekan antara pengisian matriks. Fenomena ini terlihat pada temperatur pengujian di atas $\pm 75^{\circ}\text{C}$. Namun peristiwa yang agak berbeda ditunjukkan oleh SA. Kecenderungan G'' akan meningkat seiring penambahan SiO₂ diprediksi baru akan tampak pada pengujian dengan pemanasan di atas 80°C . Penyebabnya adalah struktur silika amorf yang berukuran sangat kecil (nanometrik) dan tak berbentuk (tampak dari hasil pengujian SEM dan TEM), sehingga pola penurunan G'' memiliki urutan yang berbeda jika dibandingkan dengan SQ dan SC. Sehingga dapat disimpulkan bahwa PEG/SQ menyimpan energi paling banyak sekaligus melepaskan juga paling banyak, sebaliknya dengan PEG/SA.

Dari citra SEM komposit dengan penguat silika 80%wt berbagai fasa memiliki *crack* yang tidak merambat (Gambar 2.23(a)), karena pengisi (SiO₂) berperan sebagai penghalang yang mampu menyerap sebagian besar energi yang diaplikasikan pada material, sehingga kekuatan komposit meningkat. Hal ini didukung dengan hasil pengujian DMA, yang mana modulus penyimpanan pada komposisi 80%wt SiO₂ relatif tinggi dibanding komposisi yang lain, meskipun sudah melalui daerah T_g . Apabila dikaitkan dengan faktor hilang (G'') sebagai keluaran DMA, komposit dengan 80%wt SiO₂ memiliki nilai G'' paling tinggi

dibanding komposisi yang lain. Besarnya energi yang dilepas sebagai respon dari beban dinamis maupun kenaikan temperatur akan mengurangi perambatan *crack* (Manjunatha dkk., 2010) dan ini konsisten dengan citra SEM. Ma dkk. (2002) mengevaluasi pengaruh bentuk penguat terhadap *cracking* (Ma dkk., 2002). Penguat dengan bentuk cenderung melingkar lebih tahan terhadap perambatan *crack* akibat deformasi plastis dari matriks, jika dibandingkan dengan penguat dengan bentuk segiempat. Namun penguat dengan bentuk segitiga akan memiliki ketahanan yang lebih tinggi dibandingkan bentuk melingkar dikarenakan luas permukaan sentuh untuk berikatan lebih besar (ACI Committee 544, 2010). Teori ini mengkonfirmasi perbedaan nilai modulus komposit dengan penguat SQ yang bernilai paling tinggi dengan struktur kristal trigonal (cenderung segitiga) dibandingkan dengan SC (tetragonal), dan SA yang tidak berbentuk. Namun ketahanan yang tinggi terhadap temperatur ditunjukkan pada komposit PEG 4000/SA karena ukuran kristalnya yang paling kecil.

BAB 5

KESIMPULAN

5.1. Kesimpulan

Dari penelitian yang telah dilakukan, didapatkan beberapa kesimpulan yang menjawab tujuan penelitian ini, yaitu:

1. Dari proses preparasi serbuk silika dengan berbagai ukuran dan morfologi, didapatkan:
 - a. Serbuk silika kuarsa dengan ukuran partikel 349 nm dan memiliki struktur kristal fasa kuarsa SiO_2 (nomor PDF 16-2490).
 - b. Serbuk silika amorf dengan ukuran partikelnya 204 nm yang memiliki struktur amorf.
 - c. Serbuk silika amorf setelah kalsinasi pada temperatur 950°C memiliki ukuran partikel sebesar 258 nm, dengan fasa *high cristobalite* (nomor PDF 76-1390).
2. Kekuatan mekanik dari pengujian DMA (*shear mode*/modulus geser), dan sifat viskoelastis komposit PEG 4000/ SiO_2 dengan variasi jenis pengisi memberikan beberapa hasil, yaitu:
 - a. Nilai modulus penyimpanan tertinggi dimiliki komposit PEG 4000/SQ, kemudian diikuti dengan komposit berpenguat SQ dan SA, yaitu (1261 ± 18) MPa pada komposit dengan 80%wt SQ.
 - b. Nilai modulus penyimpanan PEG 4000/SQ dan PEG 4000/SC memiliki pola penurunan yang relatifurut sesuai dengan penambahan pengisi. Hal berbeda tampak pada komposit berpenguat SA, namun nilainya relatif stabil (pola penurunan tidak terlalu signifikan).
 - c. Faktor hilang dari komposit PEG 4000/ SiO_2 (untuk semua pengisi) turun sesuai dengan penambahan silika dan semakin jelas terjadi pada temperatur di atas $\pm 75^\circ\text{C}$ saat PEG sepenuhnya telah meleleh.

- d. Puncak $\tan \delta$ tertinggi dimiliki oleh komposit berpengisi 0%wt silika (untuk seluruh pengisi) yang menandakan bahwa nilai faktor redaman tertinggi terjadi pada komposit tersebut.
- 3. Pengamatan mikrostruktur pada komposit dengan variasi jenis penguat memberikan beberapa hasil, yaitu:
 - a. Pada sampel serbuk SQ, SA maupun SC, sebagian besar mengalami aglomerasi, dengan aglomerasi paling menonjol tampak pada serbuk SA.
 - b. Persebaran silika dan PEG 4000 cukup homogen untuk masing-masing komposit.
 - c. Kerusakan akibat beban dinamis dan temperatur berupa perambatan *crack* yang lebih masif terjadi pada komposit dengan sedikit penguat silika.

5.2. Saran

Beberapa saran untuk penelitian selanjutnya:

- 1. Dalam pemilihan material komposit, dipilih material yang lebih *advance* karena pengujian DMA sangat aplikatif dalam perkembangan industri saat ini.
- 2. Preparasi dilakukan dengan lebih cermat, termasuk dalam menentukan dimensi sampel, dan bisa dikembangkan untuk menggunakan cetakan sehingga dimensi sampel akan lebih terkontrol.
- 3. Dilakukan pengujian dengan mode yang lain sesuai dengan tujuan dan jenis sampel.

DAFTAR PUSTAKA

- Abir, D. (2013). Contributions to Mechanics: Markus Reiner Eightieth Anniversary Volume (Elsevier Science).
- ACI Committee 544 (2010). Report on the Physical Properties and Durability of Fiber-Reinforced Concrete.
- Aristia, G.A.G. (2013). Analisis Komposisi Fasa Komposit Pasir Silika dan MgO (Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.).
- Aristia, G.A.G. (2014). Sifat Korosi Komposit PANi/Silika-Bervariasi-Struktur pada Larutan Salinitas Tinggi.
- Bahadur, N. Lahl, K. Singh, L. Singheiser, and K. Hilpert (2004). Influence of Nucleating Agents on The Chemical Interactions of MgO-Al₂O₃-SiO₂-B₂O₃ Glass Sialants with Components of SOFCs. *Journal of The Electrochemical Society* 151, A558–A562.
- Bhandari, H, dan Anoop, S., K., S. (2012). Conducting Polymer Nanocomposites for Anticorrosive and Antistatic Applications, in: Ebrahimi, F. (Ed.), *Nanocomposites - New Trends and Developments*. InTech.
- Biswas, K., dan Abhari, R. (2014). Low-cost phase change material as an energy storage medium in building envelopes: Experimental and numerical analyses. *Energy Conversion and Management* 88, 1020–1031.
- Cespi, M., Bonacucina, G., Mencarelli, G., Casettari, L., and Palmieri, G.F. (2011). Dynamic mechanical thermal analysis of hypromellose 2910 free films. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics* 79, 458–463.
- Charati, S.G., Jog, J.P., Kulkarni, S.S., and Kulkarni, M.G. (1994). Dynamic Mechanical Analysis and Interpretation of Molecular Motions in Polyarylates *. *Journal of Applied Polymer Science* 54, 1093–1101.
- Chuancheng, Y., Wenxia, C., and Haiyue, D. (2012). Research on Comparison of the Maximum Dynamic Shear Modulus Test. *Procedia Engineering* 28, 230–234.
- Clariant International Ltd (2014). Your Universally Aplicable Polymer Polyglykols-Polyethylene Glycols.
- Crystran Ltd. (2013). Magnesium Oxide (MgO). Poole, UK.

- Etaati, A., Pather, S., Fang, Z., and Wang, H. (2014). The study of fibre/matrix bond strength in short hemp polypropylene composites from dynamic mechanical analysis. *Composites Part B: Engineering* 62, 19–28.
- Feng, Q., Yang, J., Liu, Y., Xiao, H., and Fu, S. (2014). Simultaneously Enhanced Cryogenic Tensile Strength, Ductility and Impact Resistance of Epoxy Resins by Polyethylene Glycol. *J. Mater.Sci. Technol* 30, 90–96.
- Floerke, O.W (1955). Structural Anomalies of Tridymite and Cristobalite.
- Fu, S., Ni, P., Wang, B., Chu, B., Zheng, L., Luo, F., Luo, J., and Qian, Z. (2012). Injectable and thermo-sensitive PEG-PCL-PEG copolymer/collagen/n-HA hydrogel composite for guided bone regeneration. *Biomaterials* 33, 4801–4809.
- Gonzalez, R.M, Edwards, T.E, Lorbiecke, T.D, Winburn, R.S, and Webster, J.R (2003). Analysis of Geologic Materials Using Rietveld Quantitative X-Ray Diffraction. International Centre of Diffraction Data 2003. *Advances in X-Ray Analysis* 46, 204–209.
- Hadi, S (2011). Sintesis Silika Berbasis Pasir Alam Bancar Menggunakan Metode Kopresipitasi. Jurusan Fisika ITS, Surabaya.
- Haus, R, S, P., dan Priess C (2012). Assessment of High Purity Quartz Resources. *Quartz. Deposits, Mineralogy and Analytics* 25, 29–51.
- Hayashi, A (1991). Application Technology of High-Purity Silica. *CMC* 30–32.
- Hidayat, N (2013). Stabilitas Fisik, Fasa, dan Ekspansi Termal Kompist Pasir Silika-Alumina dan Pasir Silika-Magnesia. Jurusan Fisika ITS, Surabaya.
- Hilal (1987). Analisa Kualitatif Pasir serta Kaolin dengan Metode Difraksi Sinar-X. Universitas Sumatera Utara, Sumatera Utara.
- Irmansyah, Akhiruddin, M., dan Mahfuddin, Z. (2008). Fabrication and Characterization Dye-Sensitized Solar Cell based on TiO₂/SnO₂ Composit Electrode and Polymer Electrolite. *Jurnal Ilmu Dasar, Fisika-FMIPA-ITB* 9 No. 2, 96–103.
- ISP Optics (2001). Sappire (Al₂O₃). www.ISPOPTICS.com.
- Jong, L. (2014). Modulus enhancement of natural rubber through the dispersion size reduction of protein/fiber aggregates. *Industrial Crops dan Products* 55, 25–32.
- Keskin, S.B., Sahmaran, M., Yaman, I.O., and Lachemi, M. (2014). Correlation between the viscoelastic properties and cracking potential of engineered cementitious composites. *Construction and Building Materials* 71, 375–383.

- Kinloch, A.J., Mohammed, R.D., Taylor, A.C., Eger, C., Sprenger, S., and Egan, D. (2005). The effect of silica nano particles and rubber particles on the toughness of multiphase thermosetting epoxy polymers. *J Mater Sci* 40, 5083–5086.
- Kontou, E., dan Niaounakis, M. (2006). Thermo-mechanical properties of LLDPE/SiO₂ nanocomposites. *Polymer* 47, 1267–1280.
- Li, J., He, L., Liu, T., Cao, X., dan Zhu, H. (2013). Preparation and characterization of PEG/SiO₂ composites as shape-stabilized phase change materials for thermal energy storage. *Solar Energy Materials and Solar Cells* 118, 48–53.
- Lin, X., Zhao, N., Yan, P., Hu, H., dan Xu, F.-J. (2015). The shape and size effects of polycation functionalized silica nanoparticles on gene transfection. *Acta Biomaterialia* 11, 381–392.
- Ma, Y., Tan, M., dan Wu, K. (2002). Effect Of Different Geometric Polypropylene Fibers on Plastic Shrinkage Cracking of Cement Mortars. *Materials and Structures* 35, 165–169.
- Manjunatha, C.M., Taylor, A.C., Kinloch, A.J., dan Sprenger, S. (2010). The tensile fatigue behaviour of a silica nanoparticle-modified glass fibre reinforced epoxy composite. *Composites Science and Technology* 70, 193–199.
- Menard, K.P. (2008). *Dynamic Mechanical Analysis- A practical Introduction* (Second Edition) (CRC Press Taylor & Francis Group).
- Munasir, Sulton, A, Triwikantoro, Zainuri, M, dan Darminto (2013). Synthesis of Silica Nanopowder Produced from Indonesian Natural Sand via Alkalifussion Route. The 2nd International Conference on Theoretical and Applied Physics, American Institute of Physics, Palangkaraya 28–31.
- Murayama, T (1978). *Dynamic Mechanical Analysis of Polymer Material*. Elsevier, New York p. 61.
- Musić, Filipović-Vinceković, N, dan Sekovanić, L (2011). Precipitation of Amorphous SiO₂ Particles and Their Properties. *Brazilian Journal of Chemical Engineering* 28, 89–94.
- Najam, A.R. (2011). Evaluation of the Fatigue behavior for the polymer matrix composite and hybrid composite. *Nahrain University, College of Engineering Journal (NUCEJ)* 14, 149–159.
- Pabst, W., dan Gregorova, E. (2013). ELASTIC PROPERTIES OF SILICA POLYMORPHS. *Ceramics – Silikáty* 57, 167–184.

- Pabst, W., Gregorová, E., dan Kutzendörfer, J. (2014). Elastic anomalies in tridymite- and cristobalite-based silica materials. *Ceramics International* *40*, 4207–4211.
- Perdana, F. (2010). Pengaruh Variasi Temperatur Sintering terhadap Ketahanan Aus Bahan Rem Sepatu Gesek. Laporan Tugas Akhir. Universitas Muhammadiyah, Surakarta.
- Pisello, A.L., Cotana, F., Nicolini, A., dan Buratti, C. (2014). Effect of dynamic characteristics of building envelope on thermal-energy performance in winter conditions: In field experiment. *Energy and Buildings* *80*, 218–230.
- Pothan, L.A., Oommen, Z., and Thomas, S. (2003). Dynamic Mechanical Analysis of Banana Fiber Reinforced Polyester Composites. *Composites Science and Technology* *63*, 283–293.
- Ramdani, N., Wang, J., Wang, H., Feng, T., Derradji, M., dan Liu, W. (2014). Mechanical and thermal properties of silicon nitride reinforced polybenzoxazine nanocomposites. *Composites Science and Technology* *105*, 73–79.
- Rosso, P., Ye, L., Friedrich, K., dan Sprenger, S. (2006). A Toughened Epoxy Resin by Silica Nanoparticle Reinforcement. *J Appl Polym Sci* *100*, 1849–1853.
- Roy, D.M, and Roy, R (1964). Tridymite-Cristobalite Relations dan Stable Solid Solutions. *The American Mineralogist* *49*, 952–962.
- Shitanoki, Y., Bennison, S.J., dan Koike, Y. (2014). A practical, nondestructive method to determine the shear relaxation modulus behavior of polymeric interlayers for laminated glass. *Polymer Testing* *37*, 59–67.
- Siddiqui, N.A., Khan, S.U., and Kim, J.-K. (2013). Experimental torsional shear properties of carbon fiber reinforced epoxy composites containing carbon nanotubes. *Composite Structures* *104*, 230–238.
- Silvia, L. (2013). Pelapisan Komposit PANI/BaM-SiO₂ Berbasis Material Alam Sebagai Penyerap Gelombang Mikro dan Pelapis Anti Korosi pada Baja Grade A Tipe AH36. Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.
- Sims, G.D., dan Gnaniah, S.J.P.2009. Improved Procedures for The Determination of T_g by Dynamic Mechanical Analysis.
- Stark, W. (2013). Investigation of the curing behaviour of carbon fibre epoxy prepreg by Dynamic Mechanical Analysis DMA. *Polymer Testing* *6*, 231–239.

- Stark, W., Jaunich, M., dan McHugh, J. (2015). Dynamic Mechanical Analysis (DMA) of epoxy carbon-fibre prepreps partially cured in a discontinued autoclave analogue process. *Polymer Testing* 41, 140–148.
- Stuart, B. (2004). *Infrared Spectroscopy: Fundamentals and Applications* (Willey).
- Suasgoro (2000). *Fisika Keramik* (Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.).
- Tang, B., Cui, J., Wang, Y., Jia, C., dan Zhang, S. (2013). Facile synthesis and performances of PEG/SiO₂ composite form-stable phase change materials. *Solar Energy* 97, 484–492.
- Unga, J., Tajarobi, F., Norder, O., Frenning, G., dan Larsson, A. (2009). Relating solubility data of parabens in liquid PEG 400 to the behaviour of PEG 4000-parabens solid dispersions. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics* 73, 260–268.
- Vassilev, S.V, D, B., Andersen, L.X, Vassileva, dan Morgan (2012). An Overview of The Organic and Inorganic Phase Composition of Biomass. *Fuel* 94, 1–33.
- Wianto T, dan Ninis H.H (2008). Penentuan Mineral dan Logam sebagai Material Dasar Pengembangan Potensi Kalimantan Selatan sebagai Daerah Penghasil Nanomaterial. *Jurnal Ilmiah Fisika* 5 185–196.
- Widodo (2011). *Sintesis dan Karakterisasi Nanosilika Berbasis Pasir Bancar dengan Metode Alkali Fusion Menggunakan Kalium Hidroksida (KOH)*. Jurusan Fisika ITS, Surabaya.
- Xie, F., Yu, L., Chen, L., dan Li, L. (2008). A new study of starch gelatinization under shear stress using dynamic mechanical analysis. *Carbohydrate Polymers* 72, 229–234.

“halaman ini sengaja dikosongkan”

LAMPIRAN A

Data ICSD dan COD Analisis Data Difraksi Sinar-X

A. Data ICSD untuk Fasa Kuarsa SiO₂

Data	162490
Audit_creation_method	'Created with CONVERT.DLL (www.crystalimpact.com)'
Audit_creation_date	2013-10-07
Database_code_ICSD	162490
Publ_section_title;	State-of-the-art high-resolution powder X-ray diffraction (HRPXR) illustrated with Rietveld structure refinement of quartz, sodalite, tremolite and meionite
Chemical_formula_sum	'O2 Si1'; Silicon Oxide
Chemical_name_mineral	Quartz
Refine_ls_R_factor_all	0.054
_cell_length_a	4.9134(0)
_cell_length_b	4.9134(0)
_cell_length_c	5.4051(0)
_cell_angle_alpha	90.000
_cell_angle_beta	90.000
_cell_angle_gamma	120.000
_cell_volume	113.0(0)
_cell_formula_units_Z	3
_symmetry_int_tables_number	154
_symmetry_space_group_name_H-M	'P 32 2 1'
_symmetry_space_group_name_Hall	'P_32_2'''
_symmetry_equiv_pos_as_xyz	1 x,y,z 2 -y,x-y,2/3+z 3 -x+y,-x,1/3+z 4 x-y,-y,1/3-z 5 -x,-x+y,2/3-z 6 y,x,-z

_atom_site_u_iso_or_equiv

Si1 Si+0 0.470() 0.0000 0.6667 1.000 3 a ? d Uani ?

O1 O+0 0.4146(1) 0.2678(1) 0.7854(1) 1.000 6 c ? d Uani ?

B. Data ICSD untuk Fasa Kristobalit SiO₂

Data	9008110
Publ_author_name	'Dollase, W. A.'
Publ section title	
Reinvestigation of the structure of low cristobalite	
Locality	Ellora, Hyderabad, India
Journal name full	'Zeitschrift fur Kristallographie'
Journal page first	369
Journal page last	377
Journal volume	121
Journal year	1965
Chemical formula sum	'O2 Si'
Chemical name mineral	Cristobalite
Space group IT number	92
Symmetry space group name Hall	'P 4abw 2nw'
Symmetry space group name H-M	'P 41 21 2'
Cell angle alpha	90
Cell angle beta	90
Cell angle gamma	90
Cell length a	4.978
Cell length b	4.978
Cell length c	6.948
Cell volume	172.175
Exptl crystal density diffrn	2.318
COD chemical formula sum orig	'Si O2'
COD database code	9008110

Symmetry equiv pos as xyz

x,y,z

y,x,-z

$1/2-y, 1/2+x, 1/4+z$

$1/2-x, 1/2+y, 1/4-z$

$-x, -y, 1/2+z$

$-y, -x, 1/2-z$

$1/2+y, 1/2-x, 3/4+z$

$1/2+x, 1/2-y, 3/4-z$

Atom site label

Atom site fract x

Atom site fract y

Atom site fract z

Atom site U iso or equiv

Si	0.30004	0.30004	0.00000	0.01051
O	0.23976	0.10324	0.17844	0.01963

C. Data ICSD untuk Fasa Tridimit SiO₂

Data	2104422
Publ_author_name	Graetsch, Heribert A.'
Publ_section_title	Modulated crystal structure of incommensurate low tridymite
Journal_coeditor_code	CK5037
Journal_name_full	'Acta Crystallographica Section B'
Journal_page_first	543
Journal_page_last	550
Journal_volume	65
Journal_year	2009
Chemical_formula_sum	'O2 Si'
Chemical_formula_weight	60.1
Chemical_name_common	tridymite
Symmetry_cell_setting	monoclinic
_cell_angle_alpha	90
_cell_angle_beta	91.57(2)
_cell_angle_gamma	90

_cell_formula_units_Z	8
_cell_length_a	5.007(2)
_cell_length_b	8.599(2)
_cell_length_c	8.2202(16)
_cell_volume	353.79(18)

_space_group_symop_ssg_operation_algebraic

1 x1,x2,x3,x4

2 x1,-x2,x3+1/2,x4

3 x1+1/2,x2+1/2,x3,x4

4 x1+1/2,-x2+1/2,x3+1/2,x4

_atom_site_disorder_group

Si Si1 0.089528 0.30758(3) 0.21154 0.01252(8) Uani d . 1 . .

Si Si2 0.09056(9) 0.64149(3) 0.33670(5) 0.01242(8) Uani d . 1 . .

O O1 0.30010(19) 0.75222(11) 0.25668(13) 0.0247(3) Uani d . 1 . .

O O2 0.16026(19) 0.46589(9) 0.30179(12) 0.0224(3) Uani d . 1 . .

O O3 0.30187(19) 0.18034(9) 0.26440(14) 0.0200(3) Uani d . 1 . .

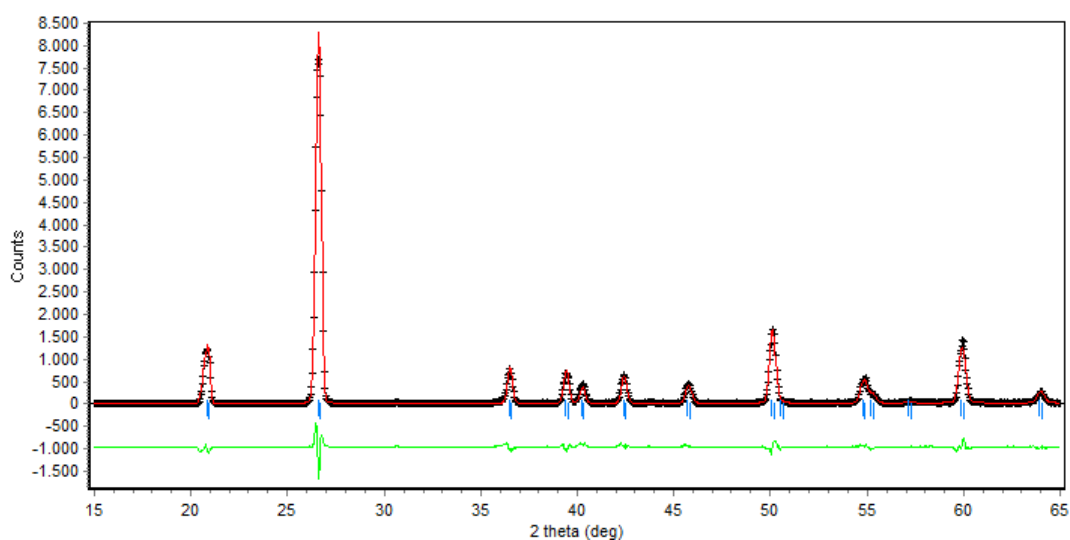
O O4 0.0976(3) 0.33257(12) 0.02435(14) 0.0288(3) Uani d . 1 . .

LAMPIRAN A

Penghalusan Rietveld dengan Perangkat Lunak Rietica

A. SiO₂ Kuarsa

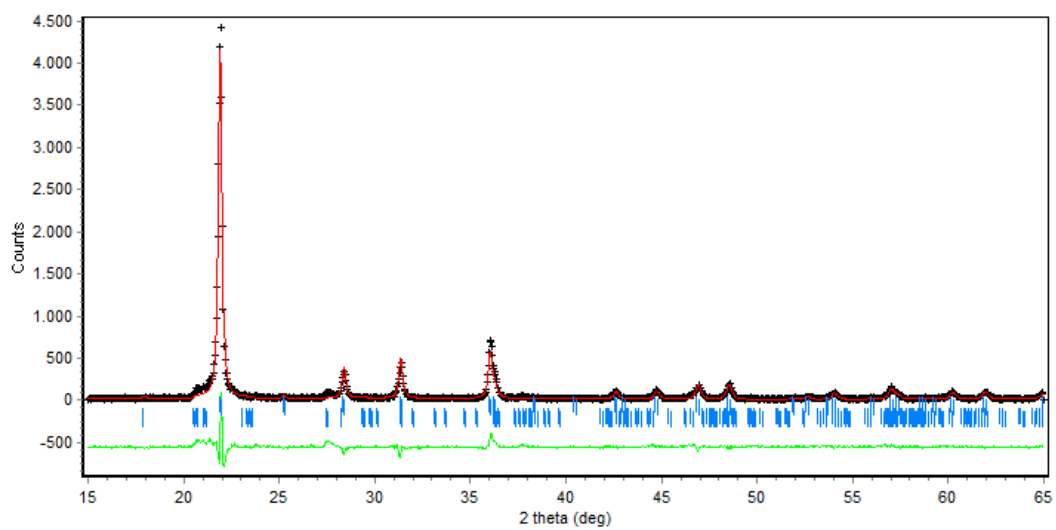
Parameter		SiO ₂ Kuarsa	
Phase Scale Factor		0,00785843	
Parameter Kisi	a	4,92330	
	b	4,92330	
	c	5,41760	
Cell Volume		113,721931	
Density		2,631	
U		0,38000	
Asymetry		0,15740	
Derived bragg		3,27	
Gam0		0,09500	
FoM	Rp(%)	Rwp(%)	Gof(%)
	9,824	14,392	3,015
Background	B0	-15,0338	
	B1	1,66995	
	B2	-0,02411	
	B3	0,00014	
Sample Displacement		-0,1495238	



B. SiO₂ Kristobalit

Molar Percentage of Phases:	Weight Percentage of Phases:
Phase 1: 61,46 (4,07)	98,82 (1,92)
Phase 2: 38,54 (6,90)	1,18 (0,63)

Parameter		SiO ₂ Kristobalit	SiO ₂ Tridimit
Phase Scale Factor		0,00169086	0,00006394
Parameter Kisi	a	4,97990	4,94680
	b	4,97990	8,60450
	c	6,94980	8,39340
Cell Volume		172,350204	357,256012
Density		2,315	2,28
U		0,20480	0,08000
Asymetry		0,05870	0,01000
Derived bragg		3,45	3,20
Gam0		0,99999	0,99999
FoM	Rp(%)	Rwp(%)	Gof(%)
	16,071	11,396	3,350
Background	B0	-36,09570	
	B1	5,75972	
	B2	-0,16224	
	B3	0,00133	
Sample Displacement		-0,0746152	



LAMPIRAN C

Preparasi DMA



(a). Sampel Komposit PEG 4000/SiO₂ untuk DMA.



(b). Persiapan preparasi untuk pengujian *shear modulus*.



(e). Sampel kedua diletakkan tepat di tengah *sample holder*.



(d). Meletakkan *sample holder* sesuai dengan urutan nomor yang tertera.



(c). Sampel pertama diletakkan tepat di tengah *sample holder*.



(f). *Sample holder* dikencangkan dengan memutar dua *screw* yang ada.



(c). Pengujian siap dijalankan dengan memasang *sample holder* ke DMA.

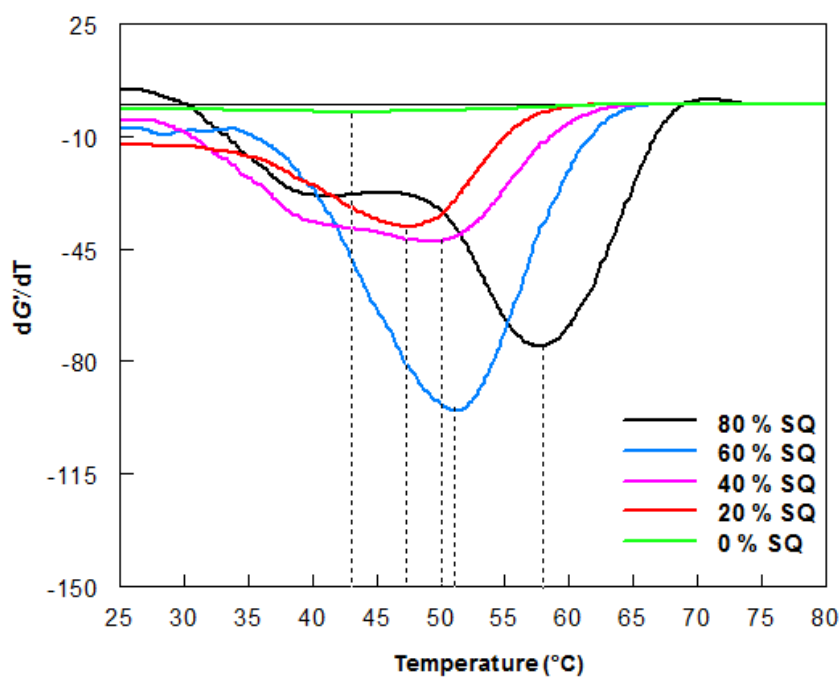
LAMPIRAN D

Penentuan *Transition Glass Temperature* (T_g) komposit

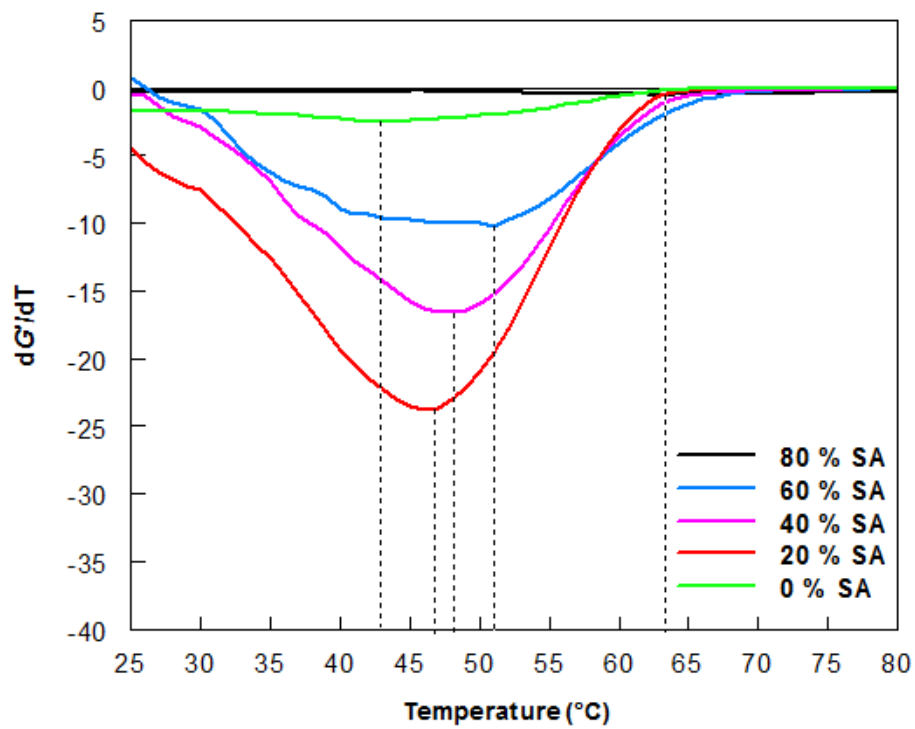
PEG 4000/SiO₂ dengan DMA

T_g ditentukan dengan pendekatan diferensial dari modulus penyimpanan terhadap temperatur (dG'/dT), dan nilai minimumnya menunjukkan T_g .

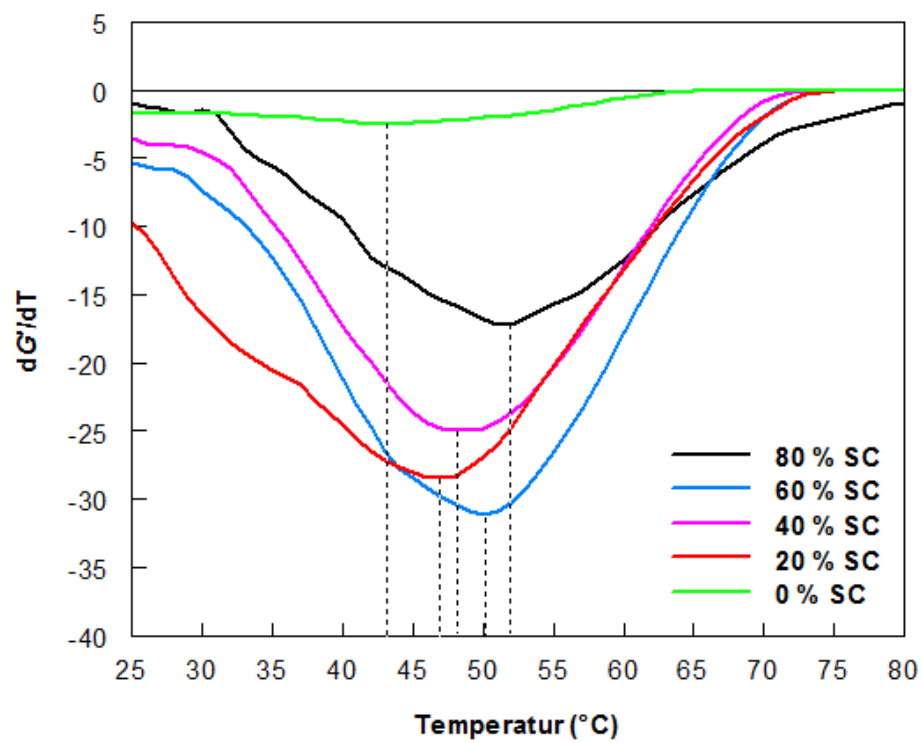
Komposisi Silika (wt %)	T_g (°C)		
	SQ	SA	SC
0	43	43	43
20	47	47	47
40	50	48	48
60	51	51	50
80	58	63	52



(a). Diferensial dari modulus penyimpanan terhadap terperatur dari komposit PEG 4000/SQ.



(b). Diferensial dari modulus penyimpanan terhadap temperatur dari komposit PEG 4000/SA.



(a). Diferensial dari modulus penyimpanan terhadap temperatur dari komposit PEG 4000/SC.

“halaman ini sengaja dikosongkan”

BIOGRAFI PENULIS



Nur Aini Fauziyah, lahir di Tuban pada tanggal 26 November 1990, merupakan anak kedua dari dua bersaudara pasangan M. Ali Ashadi dan Masti'ah. Penulis telah menempuh pendidikan formal di TK Muslimat, SDN Wotsogo 02, SMPN 1 Jatirogo, SMAN 1 Jatirogo, S1 Pendidikan Fisika Unesa angkatan 2009 dan S2 Fisika ITS angkatan 2013

dengan NRP 1113201016. Di Jurusan Fisika ini, penulis mengambil bidang minat material. Selama menjadi mahasiswa S2 Fisika ITS, penulis mengikuti publikasi artikel ilmiah dalam seminar *The 1st Material Research Society of Indonesia (MRS-Id) Meeting* di Bali dan kegiatan yang diselenggarakan oleh jurusan. Akhir kata apabila ada kritik dan saran, dapat dikirimkan ke: aini.zierra@gmail.com.